

金属微細粒子を用いた低温焼結接合材料の機械的特性および強度信頼性に関する研究

著者	鈴木 智久
発行年	2019
学位授与大学	筑波大学 (University of Tsukuba)
学位授与年度	2019
報告番号	12102甲第9276号
URL	http://doi.org/10.15068/00158014

金属微細粒子を用いた低温焼結接合材料の
機械的特性および強度信頼性に関する研究

2019年 9月

鈴木 智久

金属微細粒子を用いた低温焼結接合材料の
機械的特性および強度信頼性に関する研究

鈴木 智久

システム情報工学研究科

筑波大学

2019年 9月

目 次

第1章 緒論	1
1.1 背景	1
1.2 低温焼結接合技術	3
1.3 実用化に向けた課題	6
1.4 低温焼結接合材の機械および疲労特性に関する従来の研究	6
1.5 本研究の目的と構成	7
1.6 参考文献	8
第2章 焼結 Ag の機械的特性	16
2.1 緒言	16
2.2 実験方法	17
2.3 解析方法	20
2.4 結果と考察	23
2.5 結言	32
2.6 参考文献	32
第3章 焼結 Cu の機械的特性	34
3.1 緒言	34
3.2 実験方法	34
3.3 解析方法	38
3.4 結果と考察	39
3.5 結言	47
3.6 参考文献	48
第4章 焼結 Ag の疲労特性	49
4.1 緒言	49
4.2 実験方法	49
4.3 解析方法	51
4.4 結果と考察	55
4.5 結言	62
4.6 参考文献	63
第5章 焼結 Cu の疲労特性	64
5.1 緒言	64
5.2 実験方法	64
5.3 解析方法	66
5.4 結果と考察	68
5.5 結言	72
5.6 参考文献	74

第6章 パワーモジュールの信頼性評価	75
6.1 緒言	75
6.2 実験方法	75
6.3 解析方法	77
6.4 結果と考察	81
6.5 結言	90
6.6 参考文献	90
第7章 結論	91
謝辞	94
本論文に関連する発表論文	95

第1章 緒論

1.1 背景

近年、環境保護や省エネに対する意識の高まりを背景として、鉄道、ハイブリッド自動車（Hybrid Electric Vehicle; HEV）、電気自動車（Electric Vehicle; EV）などの電動車両の普及が急速に進んでいる。これらの電動車両の省エネ化実現に向け、電力変換装置であるインバータの小型軽量化や電力変換効率向上が重要な課題となっている[1-5]。インバータは、鉄道や HEV の内部に搭載され、架線やバッテリーなどから供給される直流や単相交流の電流をモータなどの電動機で使用する三相交流電流に変換する装置である。インバータの内部にはパワーモジュールと呼ばれる複数のトランジスタが実装されたモジュールが搭載されており、これらのトランジスタが高速でオンオフのスイッチング動作を行うことで、直流を交流へ変換する。

パワーモジュールの内部構造を図 1.1 に示す。パワーモジュールは、Si などから成る半導体素子、Cu などの配線層と AlN（窒化アルミニウム）などのセラミックス基板により構成された配線基板、Cu などから成るベース板がはんだなどの接合材により一体化され、ケースに装着された構造となっている。ケースには、エミッタ、コレクタ、ゲートに対応した電極端子が配置されており、半導体素子や配線基板に Al ワイヤなどで接続されている。ゲート電極においてオンオフの制御を行い、スイッチング動作を行う。この際、半導体素子が抵抗となり発熱するため、それに伴う温度上昇により半導体素子が故障する恐れがある。例えば、Si を用いた半導体素子の場合、その動作限界温度は 200℃程度である[6]。このためパワーモジュールは、通常、動作限界温度を超えないように、水冷式や空冷式の冷却器により冷却されながら使用される。

前述のようにパワーモジュールには、省エネ化のための小型軽量化と電力変換効率の向上が求められているが、現在の Si を用いた半導体素子では、その材料物性に起因する性能限界に近づきつつあると言われており[1, 7, 8]、より性能の高い SiC や GaN などのワイドバンドギャップ（Wide BandGap; WBG）半導体の利用が注目されている[7-9]。WBG 半導体は従来の Si に比べてバンドギャップが大きく、絶縁破壊電界、熱伝導率などの諸物性が優れており、低損失化や 200℃以上の高温動作化など様々なメリットが得られることが知られている[1,7-9]。中でもパワーモジュールの高温動作化

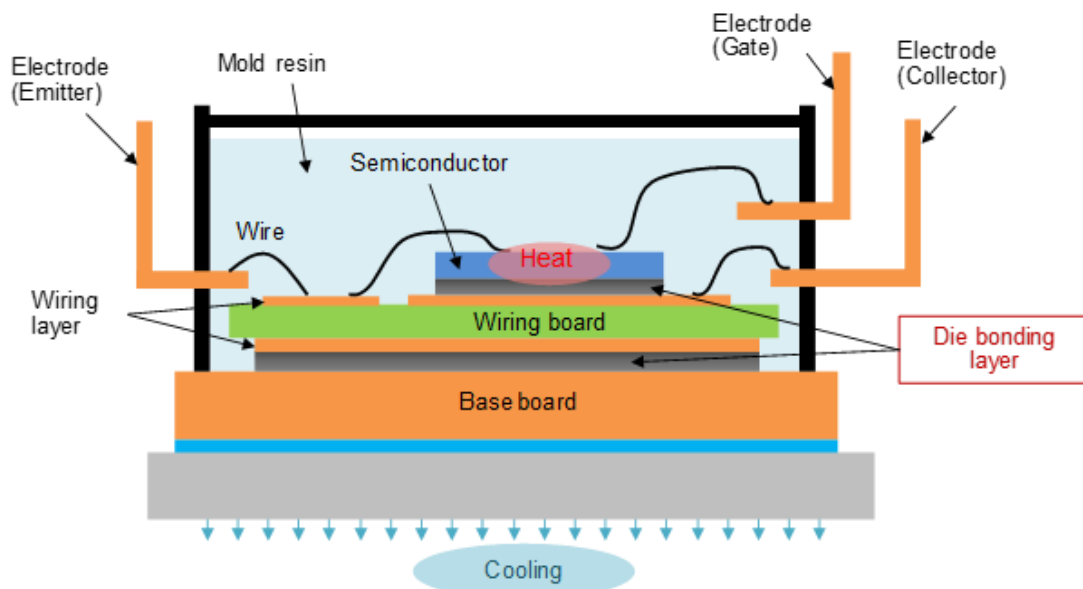


Fig. 1.1 Structure of power module.

は、冷却器の簡素化が可能になるため、インバータや周辺の冷却システムの小型軽量化につながるという利点がある。一例として、HEV のインバータにおいて、従来の Si 半導体素子から SiC 半導体素子に変更することで、低水温（65℃）のインバータ専用の冷却系を廃止し、高水温（110℃）のエンジン専用の冷却系と共用化可能とすることなどが検討されている[1]。

このように、パワーモジュールの高温動作化には多くのメリットがあるが、これを実現するためには、使用部材の高耐熱化が必須の課題となる。使用部材の中で特に問題となるのは、はんだから成る接合部材である。従前より使用されている Sn ベースの鉛フリーはんだは、融点 220℃～240℃であり[10, 11]、200℃以上の高温環境においては、融点に近い温度域となることから使用できない。また、融点 300℃の鉛を 85% 以上含有した高融点はんだ（以下、鉛はんだと記す）は、鉛が人体に有害なことから将来的に RoHS（Restriction of Hazardous Substances）指令[12]の対象項目となることが予想される。このため、200℃以上の高温動作に対応し、環境負荷が少ない新しい接合材の開発が急務となっている。高耐熱の接合材としては、高温鉛フリーはんだや遷移的液相焼結法を利用した接合材など様々な手法が提案されているが[13, 14]、その中でも高い信頼性、耐熱性、放熱性を兼ね備えた手法として、金属微粒子を用いた低温焼結接合技術に注目が集まっている[15-27]。

1.2 低温焼結接合技術

接合材に用いられる主な金属の融点と熱伝導率（放熱性）の関係を図 1.2 に示す。これより、高価な Au を除けば、高耐熱かつ高放熱な材料として Ag と Cu が候補材となることがわかる。しかし、これらの融点である 900℃以上の高温でパワーモジュールの接合を行うことは、周辺部材へのダメージを考えると現実的ではない。したがって、これらの材料をパワーモジュールの接合に適用するためには、一定の工夫が必要となる。

金属材料をナノやマイクロメートルオーダーまで微粒子化した場合、見かけ上の融点がバルク材よりも低くなることが知られている[28-30]。これは、粒子サイズが小さくなることで、体積に対する表面エネルギーの割合が高くなるためである。この表面エネルギーを下げるために、周辺の粒子同士が融合しようとすることにより、見かけ上の融点が下がる。表面焼結後はバルク材の融点まで溶融しない不可逆な現象となり、接合後に高い耐熱性を実現できる。この現象を利用してパワーモジュールなどの接合を行う技術を低温焼結接合技術と呼ぶ。本技術を用いることで、Ag や Cu のような高融点材料を接合材に使用しても、周辺部材へダメージを及ぼさない低温（200～400℃）でパワーモジュールを接合することが可能となる。使用される金属微粒子は、粒子径が数 μm ～nm オーダーのものが用いられ、一般的な機械部品の成型などで用いられるもの（数十 μm 以上）よりも小さい。大別すると、 μm オーダーの金属微粒子を用いるものと、nm オーダーの金属微粒子を用いるもの、それらを混合したハイブリットタイプのものに分けられる[32]。

半導体素子と配線基板を低温焼結接合技術により接合するためのプロセスを図 1.3 に示す。まず、金属微粒子を有機溶剤に混合させたペースト材料を作成する。次に、このペーストを配線基板上にメタルマスクなど用いて印刷する。乾燥工程後に半導体素子をペースト上に搭載し、高温環境で加圧しながら焼結させる。焼結後の接合層は図 1.4 に示すように多数の空孔を含む多孔質体となる。空孔率は焼結時の加圧により制御可能であるが、加圧を高くしすぎると半導体素子へのダメージが懸念されることから、完全に空孔をなくすことはできず、10～30%程度の空孔を含む。これらの空孔の影響を含めても 140～200 W/m・K 以上の高い熱伝導率が得られるため[21-23, 25]、従来のはんだ材の 20～70 W/m・K [10]と比較して高い放熱性を実現できる。

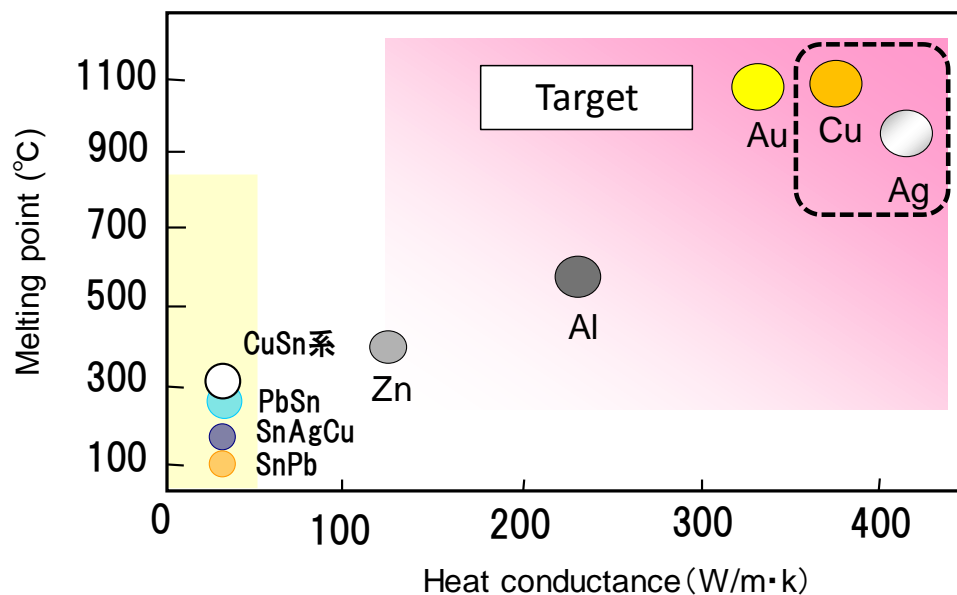


Fig. 1.2 Relationship between melting point and heat conductance of various materials.

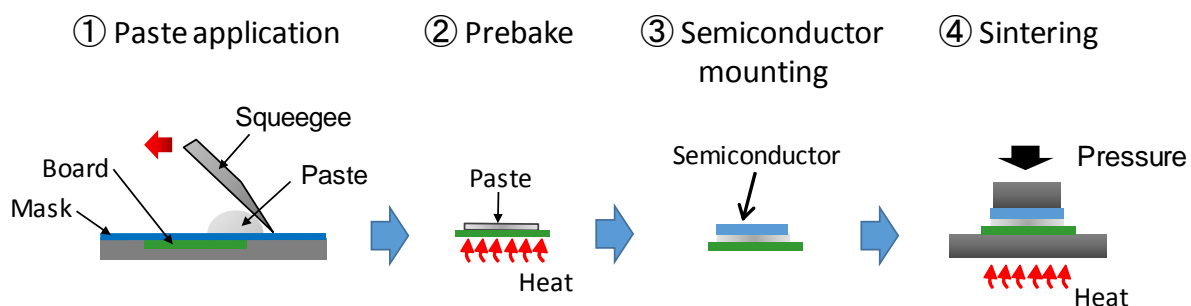


Fig. 1.3 Bonding process of low-temperature sintering.

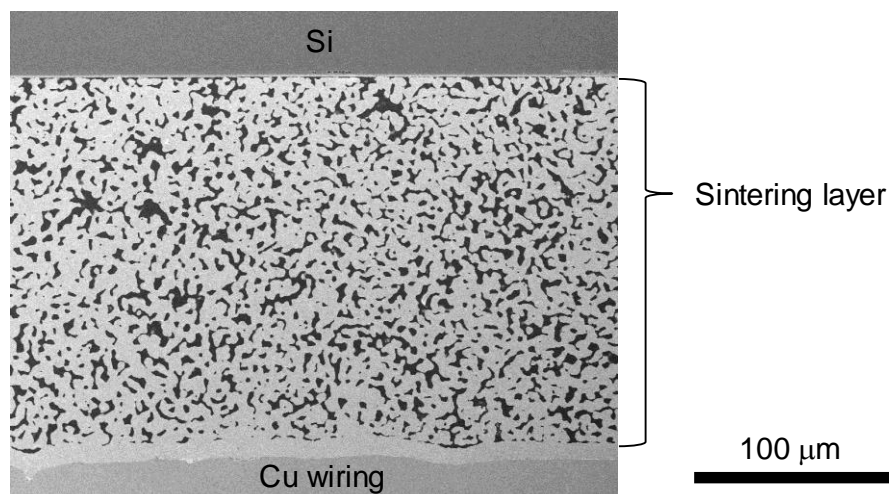


Fig. 1.4 Cross-sectional image of sintered layer.

1987 年に Siemens Microelectronics 社が、大面積のパワー半導体接合にマイクロサイズの Ag 粒子を用いる手法を特許出願しており、これが低温焼結接合技術がパワー半導体に用いられた最初の事例であると説明されている[31, 32]。その後も 1990 年代にかけて Siemens Microelectronics 社より継続的に特許出願がされてきた[33, 34]。パワーデバイス用の焼結 Ag 接合材に関する特許数の推移を図 1.5 に示す[32]。これより、1987 年に最初の報告があつてからしばらくは特許数は低水準で推移しているが、RoHS 指令が施行され鉛はんだの使用が一部製品を除き規制された 2006 年頃から急激に増加していることがわかる。このように、低温焼結接合材は、昔から技術としては存在したが、鉛はんだの規制により近年になって再度注目されている技術である。

マイクロ Ag 粒子を用いた接合に関しては、フレーク状の Ag 粒子を用いた方法や、酸化 Ag を用いた方法など、1987 年から現在に至るまで多くの報告がなされてきた[17, 19, 23, 31-39]。また 2003 年頃より、加圧圧力を低下させるため、粒子径をマイクロスケールからナノスケールとしたナノ Ag 粒子を用いたパワーモジュールの接合技術に関しても検討が進められてきた[21, 22, 40-49]。さらに 2011 年頃からは、Ag よりも低コストで高信頼性が期待される Cu 粒子を用いた接合技術に関する検討が活発化している[18, 25, 50-55]。ナノ Ag を用いた焼結接合に関しては、近年マイグレーションの問題があることや素材が高いことから、低コストなマイクロ Ag や、低コストかつ信頼性の高い Cu による接合技術への期待が高まっている[55-59]。

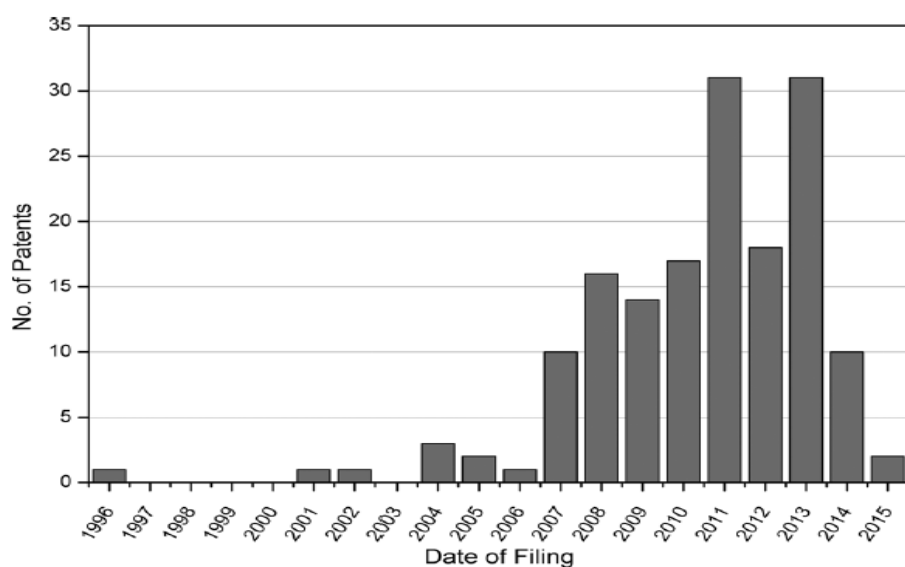


Fig. 1.5 Number of patents based on sintered Ag in bonding applications [32].

1.3 実用化に向けた課題

低温焼結接合材の実用化に向けた課題の一つとして、機械的特性や疲労特性などの強度信頼性に関わる知見が不足していることが挙げられる。前述のように、パワーモジュール稼働時には半導体素子は繰り返し発熱するため、周辺部材が繰り返し熱膨張する。この際に、周辺部材の熱膨張係数差に起因したひずみが生じる。空孔率が高い場合、主に接合材が変形し破壊するが、空孔率が低い場合は、接合材があまり変形できずに半導体素子などのその他の部材に負荷がかかり破壊してしまう。これを防ぐため、パワーモジュール稼働条件での各部材のひずみ分布と、それに対応した強度データを事前に把握し、破壊が生じないようにパワーモジュールの構造や焼結接合層のミクロ構造（空孔率）を設計することが重要となる。

パワーモジュールのひずみ分布は、一般に有限要素法によるシミュレーションによって解析することが可能である。この際に、各部材の応力-ひずみ関係などの機械的特性を入力する必要がある。しかし、低温焼結接合材は、近年注目され始めた比較的历史の浅い材料であり、前述のように使用材料、粒子サイズなど様々なパラメータが存在することから、機械的特性や疲労特性に関する実験データが十分に揃っている状況ではない。また、空孔と金属部分からなるミクロ構造がこれらの特性に与える影響についてもわかっていない部分が多い。以上より、低温焼結接合材の応力-ひずみ関係（弾塑性特性）や疲労寿命データの拡充と、ミクロ構造がそれらの特性に及ぼす影響を評価する手法の開発が必要である。

1.4 低温焼結接合材の機械および疲労特性に関する従来の研究

ナノ Ag 焼結材の機械的特性に関しては、2006 年に Bai らが引張試験により機械的特性を測定した結果に関して報告している[60]。また 2008 年には、Chen らが DMA 試験によりラチェット挙動に関して報告している[61]。さらに 2009 年に、Yu らが DMA により粘塑性の機械的特性を取得し、材料モデルに適用した結果について報告している[62]。2012 年には、Li らがラップシエア試験により疲労寿命を測定した結果を報告している[63]。また 2013 年には、荻谷らが引張試験とミクロなシミュレーションを用いて低温クリープ特性の評価を行った結果について報告している[64]。2014 年には、潮来らがナノ Ag 焼結体の疲労寿命に及ぼすひずみ速度の影響について報告している

[65]。2017 年には、塩田らが切欠き疲労試験を用いたナノ Ag 焼結体のき裂進展予測手法に関して報告している[66]。

マイクロ Ag 焼結材の機械特性に関しては、2013 年に Herboth らが引張試験により機械的特性を取得しモジュールの熱応力解析を実施している[67]。また、2014 年には Caccuri らが、2015 年には Milhet らが、それぞれ弾性率と空孔率の関係について報告している[68, 69]。さらに 2017 年には、Chen らが機械特性のサイズ効果について報告している[70]。疲労特性に関しては報告は見当たらない。一方で焼結 Cu 接合材に関しては、機械的特性・疲労特性のいずれに関しても報告は見当たらない。

上記を基に、先行研究の状況を表 1.1 にまとめた。これより、実用的に重要なマイクロ Ag や、近年注目されている焼結 Cu に関する研究が顕著に不足していることがわかる。これらの材料をパワーモジュールの低温焼結接合材に適用するためには、基本的な機械的特性や疲労特性のデータを取得し、パワーモジュール使用時のひずみ状態を把握することが非常に重要である。

1.5 本研究の目的と構成

そこで本研究では、マイクロ Ag およびナノ Cu 焼結接合材を対象に、マイクロ構造の影響を考慮した機械的特性や疲労特性を明らかにするとともに、パワーモジュールに適用した際の信頼性への影響を調査することを目的とした。

本論文ではまず、2 章において、加圧圧力、熱処理条件の異なる焼結 Ag 接合材を対象とし、焼結 Ag の引張試験結果と、焼結 Ag のマイクロな多孔質構造を再現した有限要素解析 (FEA) を用いて焼結 Ag のマイクロな応力-ひずみ関係を推定した結果について述べる[71]。つづいて 3 章では、加圧圧力の異なる焼結 Cu 接合材料を対象とし、焼結 Cu の引張試験結果と、焼結 Cu のマイクロな多孔質構造を再現した FEA を用いて焼結 Cu のマイクロな応力-ひずみ関係を推定し、焼結 Ag と比較した結果について述べる[72]。4 章では、焼結 Ag 接合材を対象として疲労試験を実施し、加圧依存性、負荷様式依存性、試験片厚さ依存性、熱処理依存性、マイクロなひずみ分布と破壊状態の相関について調査した結果について述べる[73]。5 章では、焼結 Cu 接合材を対象として疲労試験を実施し、疲労特性の加圧依存性について調査し、焼結 Ag と比較した結果について述べる[74]。さらに 6 章では、焼結 Ag および焼結 Cu 接合材を使用して接合

したパワーモジュールを対象に、温度サイクル試験による信頼性試験の結果とその際のマクロおよびミクロなひずみ分布について比較検討した結果について述べる[75-77]。最後に 7 章で、本研究の総括として各章のまとめおよび結言を述べる。

Table 1.1 Status of previous research.

Material	Nano particle						Micro particle					
	Mechanical properties		Fatigue properties		Module		Mechanical properties		Fatigue properties		Module	
	Macro	Micro	Macro	Micro	Macro	Micro	Macro	Micro	Macro	Micro	Macro	Micro
Ag	○	○	○		○		○				○	
Cu												

1.6 参考文献

- [1] 鶴田和弘, “SiC 半導体パワーデバイスの車載実用化の展望”, デンソーテクニカルレビュー, Vol. 16, 2011.
- [2] 眞田亨, 佐藤克己, “パワーデバイスの技術の現状と展望”, 三菱電機技報, Vol. 88, No. 5, 2014.
- [3] 藤平龍平, 宝泉徹, 栗原俊治, “パワー半導体の現状と展望”, 富士電機技報, Vol. 89, No. 4, 2016.
- [4] 藤平龍平, 宝泉徹, 栗原俊治, “パワー半導体の現状と展望”, 富士電機技報, Vol. 90, No. 4, 2017.
- [5] 鶴田和弘, “車載用 SiC パワーデバイスの開発動向”, デンソーテクニカルレビュー, Vol. 22, 2017.
- [6] C. Buttay, D. Planson, B. Allard, D. Bergogne, P. Bevilacqua, C. Joubert, M. Lazar, C. Martin, H. Morel, D. Tournier, et al., “State of the art of High Temperature Power Electronics”, Materials Science and Engineering: B, Vol. 176, Issue 4, pp. 283-288, 2011.
- [7] 崎山陽子, 子迫修司, 杉山亨, “適用分野が拡大する新材料パワーデバイスの進化”, 東芝レビュー, Vol. 72, No. 5, 2017.
- [8] 濱田憲治, 日野史郎, 木谷剛, “3.3kV 耐圧 SiC-MOSFET の低抵抗化技術”, 三菱電機技報, Vol. 88, No. 5, 2014.

- [9] 四戸孝, “SiC パワーデバイス”, 東芝レビュー, Vol. 59, No. 2, 2004.
- [10] 松村唯伸, 山本剛, “鉛フリーはんだによるアセンブリ技術”, FUJITSU, Vol. 56, No. 6, 2005.
- [11] 竹本正, “鉛フリーはんだ技術の現状”, 溶接学会誌, Vol. 75, No. 7, 2006.
- [12] Official Journal of the European Union, ”Directive 2002/95/EC of the European Parliament and of the Council of 27 January 2003 on the Restriction of the use of Certain Hazardous Substances in Electrical and Electronic Equipment (2003)”.
- [13] G. Zeng, S. McDonald, K. Nogita, “Development of high-temperature solders: Review”, Microelectronics Reliability Vol. 52 pp. 1306-1322, 2012.
- [14] F. Lang, H. Yamaguchi, H. Nakagawa, H. Sato, “High Temperature Resistant Joint Technology for SiC Power Devices Using Transient Liquid Phase Sintering Process”, International Conference on Electronic Packaging Technology & High Density Packaging, 2012.
- [15] 廣瀬明夫, “Ag ナノ粒子を用いた接合技術-高温はんだ代替接合への適用-”, 溶接学会誌, Vol. 76, No. 3, 2007.
- [16] E. Ide, A. Hirose, and K. F. Kobayashi: "Influence of Bonding Condition on Bonding Process Using Ag Metallo-Organic Nanoparticles for High Temperature Lead-Free Packaging", Material Transactions, Vol. 47, No. 1, pp. 211-217, 2006.
- [17] T. Morita, Y. Yasuda, E. Ide, Y. Akada, and A. Hirose: "Bonding Technique Using Micro-Scaled Ag-Oxide Particles for In-Situ Formation of Ag Nanoparticles", Materials Transactions, Vol. 49, No. 12, pp. 2875-2880, 2008.
- [18] Y. Yasuda, E. Ide, and T. Morita: "Evaluation of Cu Oxide-Based Interconnecting Materials", The Open Surface Science Journal, Vol. 3, pp. 123-130, 2011.
- [19] 保田雄亮, 床尾尚也, 井出英一, 守田俊章, 小池義彦, “酸化 Ag 粒子接合を用いた高温環境対応実装技術の開発”, エレクトロニクス実装学会誌, Vol. 16, No. 6, 2013.
- [20] 堀尾真史, 飯塚祐二, 池田良成, “SiC パワーモジュールのパッケージ技術”, 富士時報, Vol. 84, No. 5, 2011.
- [21] 平塚大祐, 佐々木陽光, 井口知洋, “パワー半導体の高温動作を可能にする大ボンド材料および焼結接合技術”, 東芝レビュー, Vol. 70, No. 11, pp. 46-49, 2015.
- [22] 守田俊章, “Ag ナノ粒子を用いた高耐熱低熱抵抗 Pb フリー接合技術とパワー半

- 導体モジュール実装への展開”，大阪大学博士論文，2008.
- [23] 守田俊章，保田雄介，井出英一，廣瀬明夫，“酸化 Ag マイクロ粒子を用いた接合技術”，エレクトロニクス実装学会誌，Vol. 12, No. 2, 2009.
- [24] 日野泰成，長谷川滋，山田浩司，巽裕章，横村伸緒，畑中康道，“高耐熱パワー半導体モジュールパッケージング要素技術”，三菱電機技報，Vol.88, No. 5, 2014.
- [25] 中子偉夫，石川大，須鎌千絵，川名祐貴，根岸征央，江尻芳則，“無加圧焼成可能な焼結 Cu 接合ペースト”，日立化成テクニカルレポート，No. 60, 2017.
- [26] R. Amro, J. Lutz, J. Rudzki, M. Thoben, A. Lindemann, “Double-Sided Low-Temperature Joining Technique for Power Cycling Capability at High Temperature”, European Conference on Power Electronics and Applications (2005), 2005.
- [27] T. Licht, R. Speckels, M. Thoben, “Sintering technology used for interconnection of large areas: potential and limitation for power modules”, International Conference on Integrated Power Electronics Systems (2010), 2010.
- [28] M. Takagi, "Electron-Diffraction Study of Liquid-Solid Transition of Thin Metal Films", J. Phys. Soc. Japan, Vol.9, No.3, pp.359-363, 1954.
- [29] J. R. Groza and R. J. Dowdin, "Nanoparticulate Materials Densification", NanoStructured Materials, Vol. 7, No. 7, pp. 749-768, 1996.
- [30] G. L. Allen, R. A. Bayles, W. W. Gile, and W. A. Jesser, "Small Particle Melting of Pure Metals", Thin Solid Films, Vol. 144, No. 4, pp. 297-306, 1986.
- [31] Siemens, “Method of securing electronic components to a substrate”, U. S. patent, No. US4810672B2, 1987.
- [32] K. S. Siow, Y. T. Lin, “Identifying the Development State of Sintered Ag (Ag) as a Bonding Material in the Microelectronic Packaging Via a Patent Landscape Study”, Journal of Electronic Packaging, Vol. 138, Issue 2, 2016.
- [33] Siemens, “Method for fastening electronic components to a substrate using a film”, U. S. patent, No. US4856185, 1989.
- [34] Siemens, “Method for producing a semiconductor modular structure”, U. S. patent, No. US5379942, 1995.
- [35] C. Gobl, J. Faltenbacher, “Low temperature sinter technology Die attachment for power electronic applications”, CIPS2010, 2010.
- [36] J. Jiu, H. Zhang, S. Nagao, T. Sugahara, N. Kagami and K. Suganuma, “A new micro-Ag

- paste for high power semiconductor devices”, 2016 China Semiconductor Technology International Conference (CSTIC), 2016.
- [37] Nichia, “Method for producing conductive material, conductive material obtained by the method, electronic device containing the conductive material, light-emitting device, and method for producing light-emitting device”, U. S. Patent No. US8968608B2, 2015.
 - [38] Henkel, “Sinterable Ag flake adhesive for use in electronics”, U. S. Patent No. US8974705B2, 2015.
 - [39] F. Yu, R. Wayne Johnson, “Pressureless sintering of microscale Ag paste for 300°C Applications”, IEEE transactions on components, packaging and manufacturing technology, Vol. 5, No. 9, 2015.
 - [40] 井出英一、安形真治、廣瀬明夫、小林紘二郎：” Ag ナノ粒子を用いた実装プロセスの基礎的検討”，第 13 回マイクロエレクトロニクスシンポジウム論文集, pp. 96-99, 2003.
 - [41] 廣瀬明夫、井出英一、小林紘二郎：” ナノ粒子を用いた新しい接合技術”，エレクトロニクス実装学会誌, Vol.7, No.6, pp.511-515, 2004.
 - [42] E. Ide, S. Angata, A. Hirose, and K. F. Kobayashi : ” Bonding of Cu Using Ag Metallo-Organic Nanoparticles”, The 14th Iketani Conference, November, pp. 24-26, 2004.
 - [43] Morita, T., Ide, E., Yasuda, Y., Hirose, A., and Kobayashi, K., “Study of Bonding Technology Using Ag Nanoparticles,” Jpn. J. Appl. Phys. Part 1, 47(8 PART 1), pp. 6615–6622, 2008.
 - [44] Zheng, H., Berry, D., Ngo, K. D., and Lu, G. Q., “Chip-Bonding on Cu by Pressureless Sintering of NanoAg Paste Under Controlled Atmosphere.,” IEEE Trans. Compon. Packag. Manuf. Technol., 4(3), pp. 377–384, 2014.
 - [45] Peng, P., Hu, A., Gerlich, A. P., Zou, G., Liu, L., and Zhou, Y. N., “Joining of Ag Nanomaterials at Low Temperatures: Processes, Properties, and Applications,” ACS Appl. Mater. Interface, 7(23), pp. 12597–12618, 2015.
 - [46] Chen, S., Fan, G., Yan, X., LaBarbera, C., Kresge, L., and Lee, N. C., “Achieving High Reliability Via Pressureless Sintering of Nano-Ag Paste for Die-Attach,” 16th International Conference on Electronic Packaging Technology (ICEPT), Changsha, China, Aug. 11–14, pp. 367–374, 2015.
 - [47] Fu, S., Mei, Y., Li, X., Ning, P., and Lu, G. Q., “Parametric Study on Pressureless Sintering of NanoAg Paste to Bond Large-Area (100 mm²) Power Chips at Low

- Temperatures for Electronic Packaging,” J. Electron. Mater., 44(10), pp. 3973–3984 , 2015.
- [48] Chua, S., Siow, K., and Jalar, A., “Microstructural Studies and Bonding Strength of Pressureless Sintered Nano-Ag Joints on Ag, Direct Bond Cu (DBC) and Cu Substrates at 300 °C,” J. Alloy Compd, 2016.
- [49] 渡辺智文, 中島尚耶, 武居正史: “Ag ナノ粒子を用いた接合材料の無垢 Cu 基板との接合信頼性の検討”, 第 23 回「エレクトロニクスにおけるマイクロ接合・実装技術」シンポジウム, 2017.
- [50] T. Morita, Y. Yasuda: “New Bond Technique Using Cu Oxide Materials”, Materials Transactions, Vol. 56, No. 6, pp. 878–882, 2015.
- [51] A. Konno, T. Miyazaki, Y. Yasuda, O. Ikeda, H. Nakano, T. Morita, H. Hozouji, M. Mori: “Highly Reliable and Lead-Free High Power IGBT Modules Using Novel Cu Sintering Die Attachment”, Power Conversion and Intelligent Motion (PCIM) Europe, pp. 78-83, 2016.
- [52] 北村晃良, 川名泰仁, 小山優, 成清善孝, 福本邦宏: “SiC パワーデバイス向け Cu ナノシンター接合材の開発とその評価”, 第 23 回「エレクトロニクスにおけるマイクロ接合・実装技術」シンポジウム, 2017.
- [53] 長谷川和基, 粕谷雅人, 金子俊輔, 梶村優太, 山田靖, 長田裕仁, 佐野義之: “無加圧窒素雰囲気による Cu ナノ粒子接合の特性評価” 第 27 回マイクロエレクトロニクスシンポジウム 秋季大会, 2017.
- [54] H. Nakako, D. Ishikawa, C. Sugama, Y. Kawana, M. Negishi, Y. Ejiri, “Sintering Cu Die-Bonding Paste Curable Under Pressureless Conditions”, Power Conversion and Intelligent Motion (PCIM) Europe 2017.
- [55] T. Furukawa, M. Shiraishi, Y. Yasuda, A. Konno, M. Mori, S. Watanabe, T. Arai, M. Nakamura, D. Kawase, “High power density side-gate HiGT modules with sintered Cu having superior high-temperature reliability to sintered Ag”, 2017 29th International Symposium on Power Semiconductor Devices and IC's (ISPSD), 2017.
- [56] 菅沼克昭, 長尾至成, 菅原徹, 横井絵美, 張昊, 酒金婷 “極限環境パワー半導体の界相界面制御”, 第 25 回マイクロエレクトロニクスシンポジウム, MES2015, 2015.
- [57] R. Riva, C. Buttay, B. Allard, P. Bevilacqua, “Migration issues in sintered-Ag die

- attaches operating at high temperature”, *Microelectronics Reliability*, Elsevier, Vol. 53, Issue 9-11, pp. 1592-1596, 2013.
- [58] 西川 宏, 王 曉帆, 藤田 晶, 鎌田 信雄, 齋藤 六雄: “いがぐり状マイクロサイズ Ag 粒子を用いた Cu/Cu 接合への接合条件への影響”, *スマートプロセス学会誌*, Vol. 3, No. 4, pp. 240-245, 2014.
 - [59] 井出英一, 守田俊章, 川内祐治: “酸化 Ag マイクロ粒子を用いた In-situAgCu 合金化接合技術”, 第 24 回エレクトロニクス実装学術講演大会, 2014.
 - [60] J.G. Bai, Z.Z. Zhang, J.N. Calata, G.Q. Lu: “Low-Temperature Sintered Nanoscale Ag as a Novel Semiconductor Device-Metallized Substrate Interconnect Material”, *IEEE Transaction on Components Packaging Technologies*, Vol. 29, Issue 3, pp. 589–593, 2006.
 - [61] X. Chen, R. Li, K. Qi, G.Q. Lu, “Tensile Behaviors and Ratcheting Effects of Partially Sintered Chip-Attachment Films of a Nanoscale Ag Paste”, *Journal of Electronic Materials* 37, pp. 1574–1579, 2008.
 - [62] D. Yu, X. Chen, G. Chen, G. Lu, Z. Wang: ”Applying Anand model to low-temperature sintered nanoscale Ag paste chip attachment” *Materials & Design*, 30 (10), pp. 4574–4579, 2009.
 - [63] X. Li, X. Chen, G. Q. Lu: “Isothermal low cycle fatigue behavior of nano-Ag sintered single lap shear joint”, 2012 13th International Conference on Electronic Packaging Technology & High Density Packaging, 2012.
 - [64] Y. Kariya, H. Yamaguchi, M. Itako, N. Mizumura, and K. Sasaki: “Mechanical Behavior of Sintered Nano-sized Ag Particles”, *Journal of smart processing*, Vol. 2, No. 4, pp. 160-165, 2013.
 - [65] 潮來 真広, 塩田 竜太郎, 荻谷 義治, 水村 宜司, 佐々木 幸司: “Ag ナノ粒子焼結体の低サイクル疲労寿命におよぼす保持時間およびひずみ速度の影響”, 第 24 回マイクロエレクトロニクスシンポジウム, 2014.
 - [66] R. Shioda, Y. Kariya, N. Mizumura, K. Sasaki: “Low-Cycle Fatigue Life and Fatigue Crack Propagation of Sintered Ag Nanoparticles”, *Journal of ELECTRONIC MATERIALS*, Vol. 46, No. 2, pp. 1155 – 1162, 2017.
 - [67] T. Herboth, M. Guenther, A. Fix, and J. Wilde: “Failure Mechanisms of Sintered-Ag Interconnections for Power Electronic Applications”, *Electronic Components and Technology Conference*, pp. 1621-1627, 2013.

- [68] V. Caccuri, X. Milhet, P. Gadaud, D. Bertheau, M. Gerland: “Mechanical Properties of Sintered Ag as a New Material for Die Bonding: Influence of the Density”, *Journal of Electronic Materials*, Vol. 43, Issue 12, pp 4510-4514, 2014.
- [69] X. Milhet, P. Gadaud, V. Caccuri, D. Bertheau, D. Mellier, M. Gerland: “Influence of the Porous Microstructure on the Elastic Properties of Sintered Ag Paste as Replacement Material for Die Attachment”, *Journal of Electronic Materials*, Vol. 44, Issue 10, pp 3948-3956, 2015.
- [70] C. Chen, S. Nagao, H. Zhang, J. Jiu, T. Sugahara, K. Suganuma, T. Iwashige, K. Sugiura, K. Tsuruta: "Mechanical Deformation of Sintered Porous Ag Die Attach at High Temperature and Its Size Effect for Wide-Bandgap Power Device Design", *Journal of Electronic Materials*, Vol. 46, Issue 3, pp. 1576-1586, 2017.
- [71] T. Suzuki, T. Terasaki, Y. Kawana, D. Ishikawa, M. Nishimura, H. Nakako, K. Kurafuchi: “Effect of Manufacturing Process on Micro-Deformation Behavior of Sintered-Silver Die-Attach Material”, *IEEE Transactions on Device and Materials Reliability*, Vol. 16, Issue 4, pp. 588-596, 2016.
- [72] T. Suzuki, Y. Yasuda, T. Terasaki, M. Morita, Y. Kawana, D. Ishikawa, M. Nishimura, H. Nakako, K. Kurafuchi: “Macro- and Micro-Deformation Behavior of Sintered-Copper Die-attach Material”, *IEEE Transactions on Device and Materials Reliability*, Vol. 18, Issue 1, pp. 54-63 2018.
- [73] T. Suzuki, Y. Yasuda, T. Terasaki, M. Morita, Y. Kawana, D. Ishikawa, M. Nishimura, H. Nakako, K. Kurafuchi: “Effect of Loading Type on Fatigue Lifetime of Sintered-Silver Die Attach”, *IEEE Transactions on Device and Materials Reliability*, Vol. 18, Issue 3, pp. 350-358, 2018.
- [74] T. Suzuki, Y. Yasuda, T. Terasaki, M. Morita, Y. Kawana, D. Ishikawa, M. Nishimura, H. Nakako, K. Kurafuchi, T. Matsuda: “Tensile-Fatigue Behavior of Sintered Copper Die-Attach Material”, *IEEE Transactions on Device and Materials Reliability*, Vol. 19, Issue 2, pp. 461-467, 2019.
- [75] T. Suzuki, Y. Yasuda, T. Terasaki, M. Morita, Y. Kawana, D. Ishikawa, M. Nishimura, H. Nakako, K. Kurafuchi: “Thermal Cycling Lifetime Estimation of Sintered Metal Die Attachment”, 2016 International Conference on Electronics Packaging, 2016.
- [76] T. Suzuki, Y. Yasuda, T. Terasaki, T. Morita, Y. Kawana, D. Ishikawa, M. Nishimura, H. Nakako, K. Kurafuchi, Tetsuya Matsuda: “Evaluation of Microscopic Strain Distribution of Low-Temperature Sintering Die Attach in Thermal Cycling Test”, 2018

20th International Conference on Electronic Materials and Packaging, 2018.

- [77] 鈴木智久，保田雄亮，川名祐貴，石川大，西村正人，中子偉夫，蔵渕和彦，守田俊章，寺崎健：” 三点曲げ試験と有限要素解析による焼結金属接合材の機械的特性の評価” ，第 25 回マイクロエレクトロニクスシンポジウム，2015.

第2章 焼結 Ag の機械的特性

2.1 緒言

本章では、マイクロ Ag 粒子を用いた焼結 Ag 接合材のミクロな空孔部の寄与を含むマクロな応力-ひずみ関係、および空孔部の寄与を除いたミクロな Ag 部分の応力-ひずみ関係を推定した。推定した応力-ひずみ関係が加圧条件や熱処理条件が異なる場合に受ける影響を評価し、任意の多孔質構造におけるマクロな応力-ひずみ関係を FEA によって予測可能か検証した。推定の手順を図 2.1 に示す。最初に、引張試験結果に一致するように FEA の弾塑性パラメータをフィッティングすることでマクロな応力-ひずみ関係を導出した。次に、推定したマクロな応力-ひずみ関係と一致するようにミクロな多孔質構造を再現したモデルを用いた FEA の弾塑性パラメータをフィッティングすることで、ミクロな応力-ひずみ関係を導出した。導出したミクロな応力-ひずみ関係の妥当性を検証するため、ナノインデント試験の結果と比較を行った。

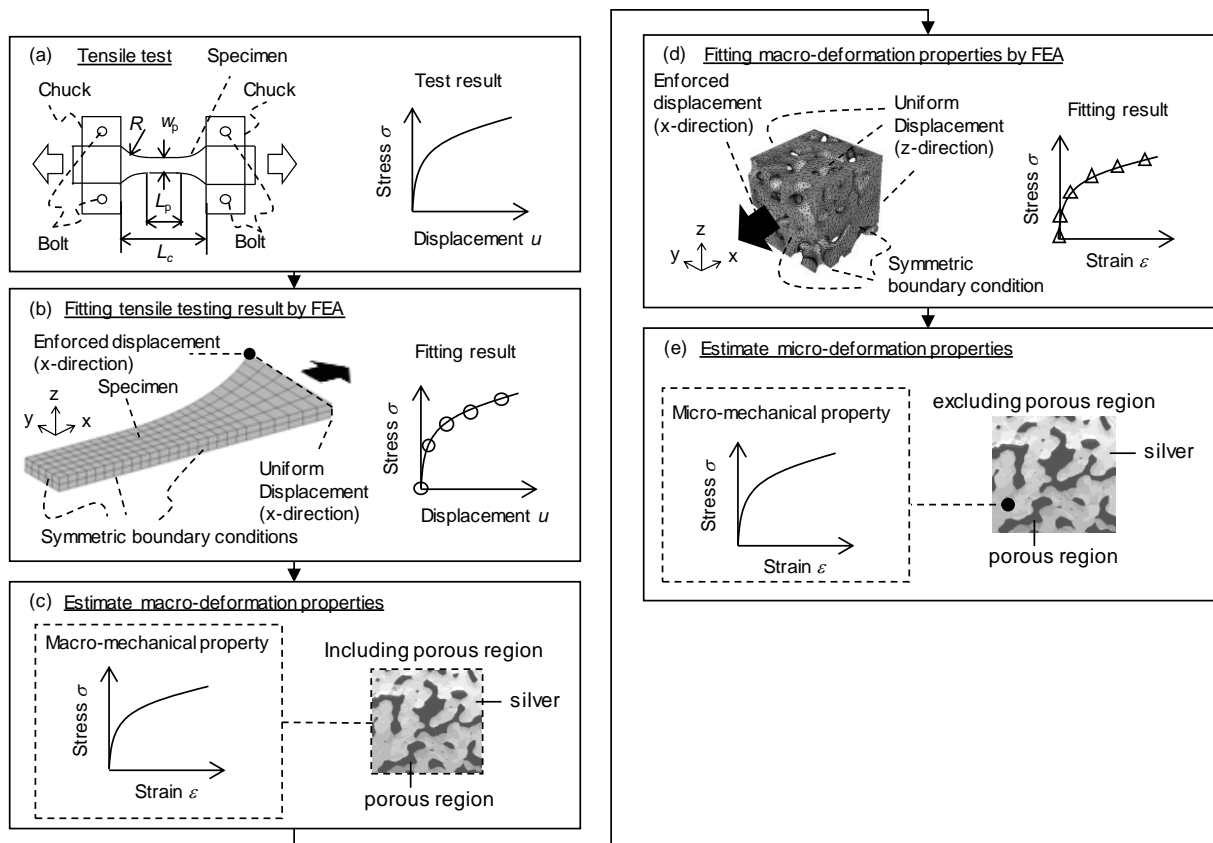


Fig. 2.1 Flow chart of estimation method for stress-strain relations of sintered Ag specimens.

2.2 実験方法

2.2.1 試験片の準備

マイクロ Ag 粒子からなるペースト材を予備焼結して作製した焼結 Ag シートを試験片として用いた。マイクロ Ag ペーストは、平均粒径約 $3\mu\text{m}$ の Ag フレーク材 (AgC-239, 福田金属箔粉工業株式会社) と有機溶剤 (ジエチルグリコールメチルエーテルアセテートテルピネオール, 90wt. %) から成る。焼結 Ag シート材は、以下に示す手順で作製した。まず、マイクロ Ag ペースト材をテフロン加工された SUS プレート上に塗布する。次に、乾燥工程 (110°C で 30 分, 180°C で 30 分) の後、 250°C で 1 時間の予備焼結を大気中にて行う。自然空冷後に作製した焼結 Ag シートをプレート分離し、長方形にカットする。最後に得られた試験片を表 2.1 に示す 3 種類の条件で本焼結した。1 番目の条件は、 300°C で 10 MPa, 10 分加圧したもの (以下, 加圧 10 と記す), 2 番目の条件は、本焼結前に 300°C で 6 時間熱処理を行い、その後 300°C で 10 MPa, 10 分加圧したもの (以下, 加圧 10A と記す), 3 番目の条件は加圧せずに 300°C で 10 分焼成したもの (以下, 無加圧と記す) である。試験片は図 2.1(a) に示す形状に放電ワイヤ加工によって加工した。

焼結 Ag と比較するため、純 Ag (99.99%) 棒材 (以下, Ag バルク材と記す) についても準備した。棒材は、JISG0567 に従った形状に加工した (標点間距離 = 15 mm, $\phi = 3\text{ mm}$)。熱処理の影響を確認するため、加工後に熱処理を実施したものと、熱処理を実施しないものの 2 種類を準備した。熱処理は、Ag の再結晶温度近傍である 470°C で 1 時間保持とした。雰囲気は真空、昇温時間は 2 時間、冷却は炉冷で 12 時間以上とした。

Table 2.1 Manufacturing conditions

Condition name	Annealing	Pressure (MPa)	Temperature ($^{\circ}\text{C}$)	Time (min)
Pressurized 10	-	10	300	10
Pressurized 10A	300°C 6 hours			
Non-pressurized	-			

2.2.2 微視構造の観察

焼結 Ag 材内部のミクロな多孔質構造を確認するため、FIB-SEM (Focused Ion Beam-Scanning Electron Microscope) によって連続的な断面画像を取得した。空孔部と金属部の境界を明確にするために、前処理として試験片の観測位置周辺にエポキシ樹脂を充填し約 100°C で熱硬化させた。その後、観察領域の表面に保護膜 (C デポジション) を堆積させ、保護膜周辺の領域を FIB 加工で除去し、対象断面に対して自動で FIB 加工と SEM 像取得を繰り返し実施した。

加工および観察には、FEI 社製 Dualbeam System Nova200 Nano-lab を使用した。FIB 加速電圧は 30 kV とした。SEM の加速電圧は 2 kV、観察倍率は 3500 倍とした。観察角度は 52° とした。観察位置は試験片の中心位置とした。観察領域は、 $x = 20 \mu\text{m}$ 、 $y = 20 \mu\text{m}$ とし、各断面の間隔を $0.2 \mu\text{m}$ として 50~100 スライス ($z = 10 \sim 20 \mu\text{m}$) 分を取得した。取得した SEM 画像の一例を図 2.2 に示す。加圧 10A は加圧 10 に比べて焼結の接合パスが太くなっており、結晶粒が粗大化していることが確認できる。無加圧は加圧 10、加圧 10A に比べてポーラス領域が多く、緻密度が低いことが予想される。

各試験片において三次元的な多孔質構造および緻密度を取得するため、取得した連続断面画像から 3 次元 CAD モデルを再構成した。変換には、汎用 3 次元画像変換ソフト Simpleware[1]を使用した。画像を二値化して Ag 領域と空孔領域を区別した。SEM 画像のボクセルサイズは、 $x = 35.7 \text{ nm}$ 、 $y = 45.3 \text{ nm}$ 、 $z = 200 \text{ nm}$ である。FIB-SEM 結果を用いて三次元構造を作成した結果を図 2.3 に示す。Simpleware で算出した空孔率 p は、加圧 10 が約 20%、加圧 10A が約 24%、無加圧が約 41%であった。

2.2.3 引張試験

2.2.1 節で作製した焼結 Ag 試験片のマクロな応力-ひずみ関係を把握するため、荷重-変位関係を引張試験によって取得した。試験には、鷺宮製作所製の微小荷重疲労試験機 (LMH207-10) を用いた。試験は大気中常温にて実施した。図 2.1(a)に示すように持ち手部を平板型のチャックで固定した。チャックの締め付けトルクは $20 \text{ cN} \cdot \text{m}$ とした。試験は変位制御によって実施し、チャック間の変位を微小変位計によって計測した。試験速度はひずみ速度が $2.5 \times 10^{-3} / \text{s}$ となるようにストローク速度を調整し、加圧 10 および加圧 10A で 0.006 mm/s 、無加圧で 0.005 mm/s と設定した。サンプル数

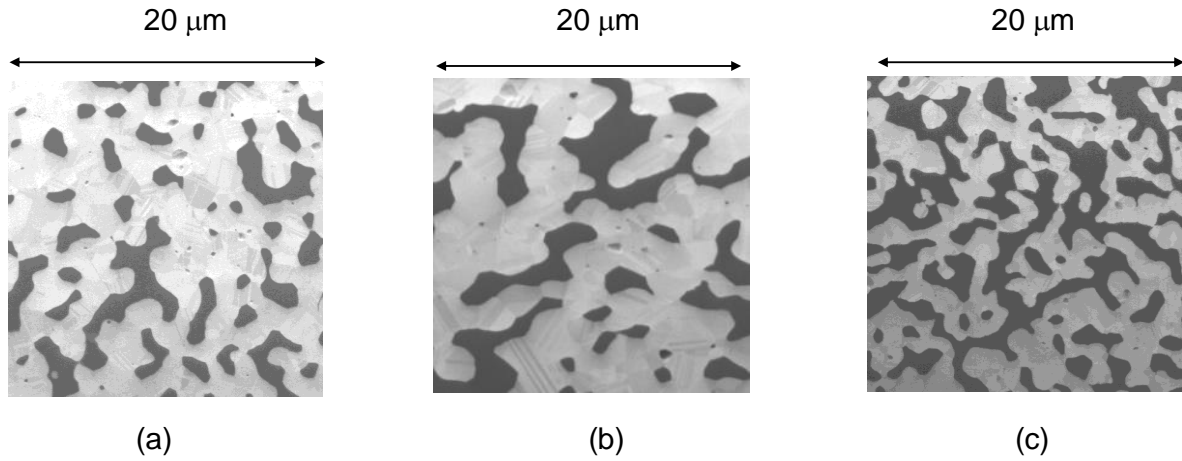


Fig. 2.2 FIB-SEM images of the sintered Ag: (a) pressurized 10, (b) pressurized 10A, (c) non-pressurized.

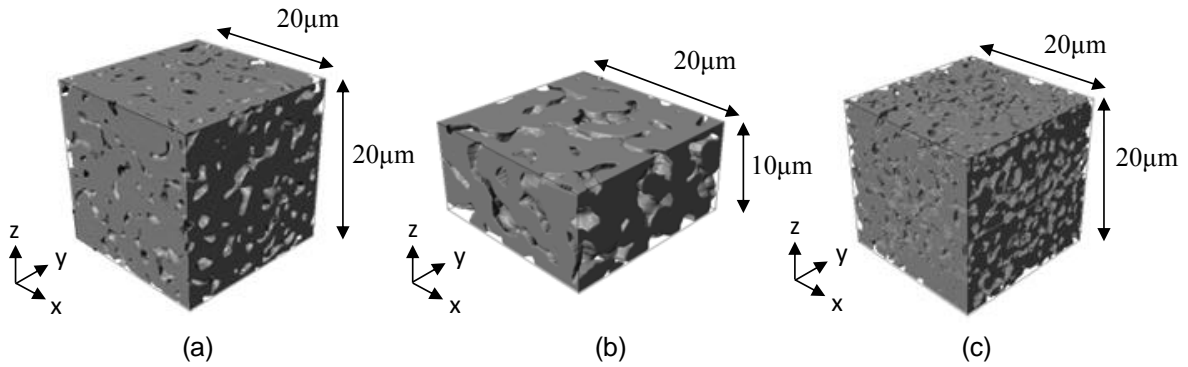


Fig. 2.3 3DCAD models of the sintered Ag: (a) pressurized 10 ($p = 20\%$), (b) pressurized 10A ($p = 24\%$), (c) non-pressurized ($p = 41\%$).

はそれぞれ 3 本として破断まで実施した。試験片の寸法を表 2.2 に示す。平行部の厚さ t と幅 w_p はマイクロメータによって測定し、測定値から断面積 A を算出した。公称応力 σ および公称ひずみ ε は次式により算出した。

$$\sigma = \frac{P}{A} \quad (2.1)$$

$$\varepsilon = \frac{d}{L_c} \quad (2.2)$$

Table 2.2 Dimensions of sintered-Ag specimens.

Condition name	w_p (mm)	L_p (mm)	t (mm)	R (mm)	L_c (mm)
Pressurized 10	1.25	2.4	0.32	3.6	7.2
Pressurized 10A	1.25	2.4	0.32	3.6	7.2
Non-pressurized	1.00	2.0	1.46	3.0	6.5

ここで P は荷重, d は微小変位, L_c はチャック間の距離である。バルク材の引張試験は JISZ 2241(2011)に従い大気中常温にて実施した。ひずみ速度は $1 \times 10^{-4}/s$ とした。ひずみは伸び計により測定した。

2.2.4 ナノインデンテーション試験

シミュレーションによって推定した焼結 Ag のミクロな応力-ひずみ関係の妥当性を検証するため, ナノインデンテーション試験によって, 焼結 Ag の金属部分の荷重-変位関係を取得した。試験片を中心位置で切断し, 樹脂埋めした後, クロスセクションポリッシャ (CP) で切断面を加工した。CP 加工済みのサンプルを治具で挟んで固定し, 断面に対して 20 点の押し込みを 10 μm 間隔で実施した。評価用のサンプルは加圧 10A を用いた。

測定装置は MTS Systems 社製の Nano Indenter XP/DCM を使用した。解析ソフトは MTS Systems 社製 Test Works 4 を使用した。圧子は稜角 115° のダイヤモンド製バーコビッチ型とした。測定は CSM (連続剛性測定法, Continuous Stiffness Measurement) にて実施した。励起振動周波数 45 Hz, 励起振動振幅 2 nm, ひずみ速度 0.05 /s, 押し込み深さ 200 nm とした。試験は室温にて実施した。試験後, SEM で押し込み位置を観察し, 金属部分を押し込んでいるものと樹脂部分を押し込んでいるものを選別した。

2.3 解析方法

2.3.1 マクロな応力-ひずみ関係の推定

焼結 Ag の引張試験では, 試験片が微小な薄板状となり, ひずみゲージによるひずみの測定が困難であった。このため, 焼結 Ag の応力-ひずみ関係は, 試験片の寸法を再現した FEA モデルを作成し, 実験の荷重-変位関係を再現するようにして求めた。FEA モデルの一例を図 2.1(b)に示す。表 2.2 に示す寸法に従い, チャック部間の試験

片形状を FEA モデルで再現した。対称性を考慮し、全体の 1/8 の領域をモデル化した。チャック部は、解析モデルの端部に一様変位の境界条件を設定することでモデル化した。試験片部分を六面体 2 次要素で分割し、試験片長手方向に強制変位を与えて荷重と変位の関係を取得した。ソルバーは汎用 FEA ソフト Abaqus/Standard version 6.13[2]を用いた。焼結 Ag 試験片の応力-ひずみ関係は、多直線近似等方弾塑性体モデルを用いて表した。ポアソン比は解析結果に大きく影響しないため、仮定値として 0.25 を用いた。詳細な値は、次節に示す方法で確認した。

応力-ひずみ関係の初期値として、式(2.1)、式(2.2)で得られた公称応力と公称ひずみを真応力、真ひずみに変換したものを扱い、荷重-変位関係の解析値と実験値が一致するようにヤング率と初期降伏応力を調整した。

2.3.2 ミクロな応力-ひずみ関係の推定

前節で推定したマクロな応力-ひずみ関係と、ミクロな多孔質構造を再現した FEA によって計算された応力-ひずみ関係が一致するように、FEA のミクロな応力-ひずみ関係を求めた。3DCAD モデルから変換して作成した FEA モデルを図 2.4 に示す。2.2.2 節で作製した 3DCAD モデルの一部分を切り出し、四面体 2 次要素で分割した。対称境界条件をモデルの片側に付与し、反対側を一様変位境界条件として強制変位を x 方向（試験片の負荷方向）に与えた。また、解析初期における強制変位節点の x 方向変位と z 方向、y 方向の変位の平均値の関係からマクロなポアソン比を求めた。焼結 Ag の Ag 部分のミクロな応力-ひずみ関係は、多直線近似等方弾塑性体モデルとした。塑性変形領域の挙動は次式に示す Ramberg-Osgood 則[3]により表した。

$$\frac{\varepsilon}{\varepsilon_0} = \frac{\sigma}{\sigma_0} + \alpha \left(\frac{\sigma}{\sigma_0} \right)^n \quad (2.3)$$

ここで ε_0 , σ_0 , α , n は材料定数である。ポアソン比は金属材料の一般的な値として 0.3 を用いた。

2.3.3 ナノインデンテーション解析

推定した焼結 Ag のミクロな応力-ひずみ関係を用いてナノインデンテーション試験を模擬した FEA を実施し、実験結果と比較することで推定結果の妥当性を確認した。図 2.5 に FEA モデルを示す。解析を簡単にするため、バーコビッチ型の圧子を等価な押し込み変位と接触面積となる円錐型圧子（半頂角 70.3°）に置き換えた[4, 5]。

解析は2次元軸対称とし、圧子部は解析的剛表面で表した。押し込み対象は、全領域がAgであると仮定した。Ag部分は四辺形1次ハイブリット要素で分割した。Ag部分の下面はz方向固定とし、端部はx方向に一様変形条件とした。圧子とAgの間に接触の境界条件を定義し、圧子にz方向の強制変位を与えた。摩擦係数は0.1とした。Ag部分の応力-ひずみ関係は、前節で推定した結果を用いた。解析によって得られた荷重-変位関係を実験結果と比較した。

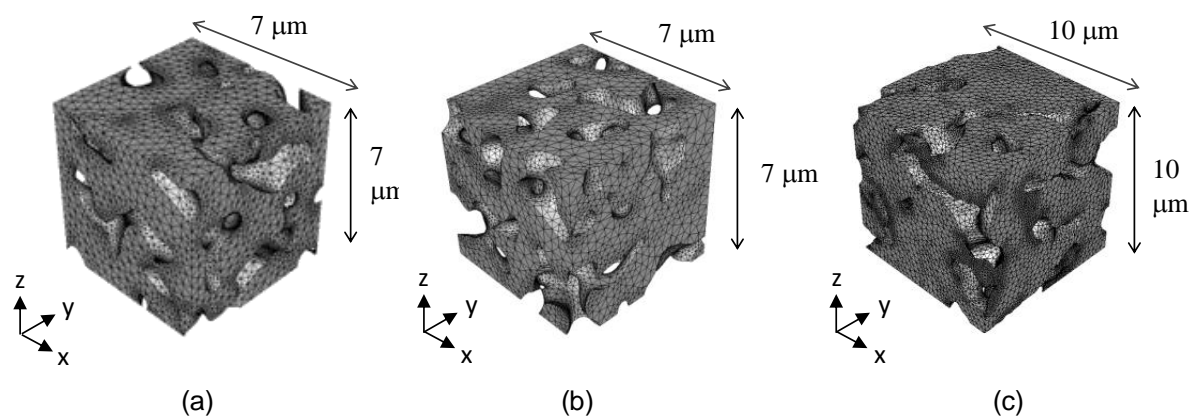


Fig. 2.4 FEA models of microscopic sintered structures for tensile analysis: (a) pressurized 10, (b) pressurized 10A and (c) non-pressurized.

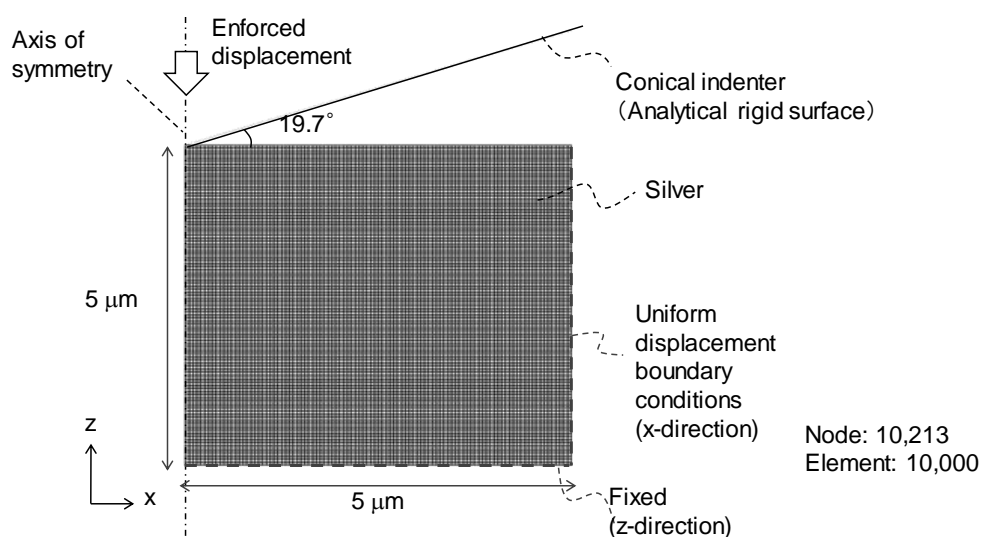


Fig. 2.5 FEA model for nanoindentation test.

2.4 結果と考察

2.4.1 引張試験

焼結 Ag の引張試験により得られた応力-変位曲線を図 2.6 に示す。本結果より、各条件における 3 ケースの応力-変位曲線はほぼ重なっており、試験片ごとのばらつきは小さい。これより、同一製造条件内の緻密度のばらつきは小さいと考えられる。

引張強さは、加圧 10 が最も大きく平均で 105 MPa、次に加圧 10A が大きく平均で 73 MPa、無加圧が最も小さく平均で 47 MPa となった。これは、各サンプルの緻密度の大小関係と一致する結果である。緻密度が低い場合、細いネックを多く有する。このような細いネック部にはひずみが集中し、早期に破壊に至ると考えられるため、緻密度が低いほど破断応力が小さい結果となったと考えられる。

破断伸びは、引張強さに比べてばらつきが大きい結果となった。加圧 10A が最も大きく、次に加圧 10、無加圧が最も小さい結果となった。加圧 10A の破断伸びが最も大きいことから、熱処理によって延性が向上したと考えられる。また、無加圧品の伸びが小さいのは、前述したように細いネック部にひずみが集中し、早期に破壊に至ったためと考えられる。

2.4.2 マクロな応力-ひずみ関係の推定

2.3.1 節に記載した方法により、焼結 Ag の空孔を含むマクロな応力-ひずみ関係を推定した。まず、応力-変位曲線の実験値と解析値をフィッティングした結果を図 2.7 に示す。これより、計算結果と実験結果はよく一致していることがわかる。つづいて、図 2.7 のフィッティング結果をもとに、各製造条件における焼結 Ag のマクロな応力-ひずみ関係を推定した結果を図 2.8 に示す。これより、ヤング率 E は加圧 10 が最も高く（約 35 GPa）、次に加圧 10A（約 30 GPa）、無加圧が最も低い結果となった（約 16 GPa）。これは、各サンプルの緻密度やミクロな応力-ひずみ関係が、製造プロセスの影響により変化した結果であると考えられるが、空孔の影響を含んでいるため、本結果のみでは影響度の切り分けはできない。

2.4.3 ミクロな応力-ひずみ関係の推定

2.3.2 節で示した方法によって、焼結 Ag の空孔部を除く Ag 部分におけるミクロな応力-ひずみ関係を推定した。前節ですでに推定した焼結 Ag のマクロな応力-ひずみ関係と FEA による計算結果をフィッティングした結果を図 2.9 に示す。これより、

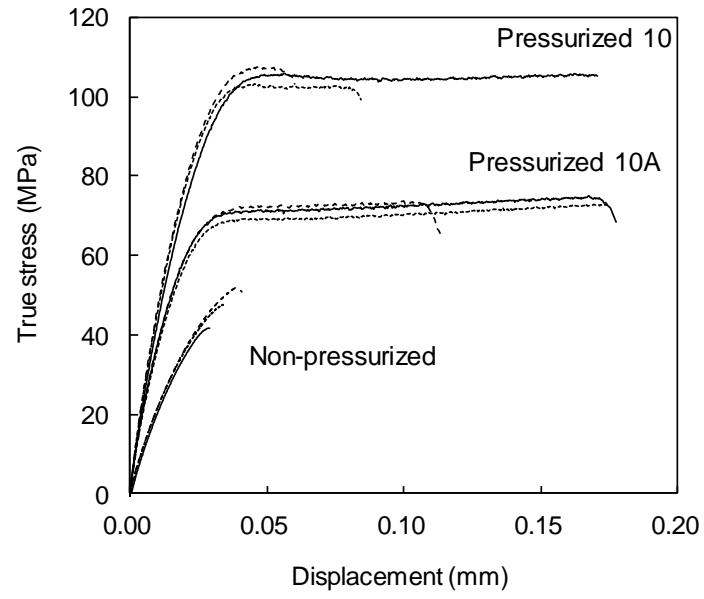


Fig. 2.6 Results of tensile tests of sintered Ag.

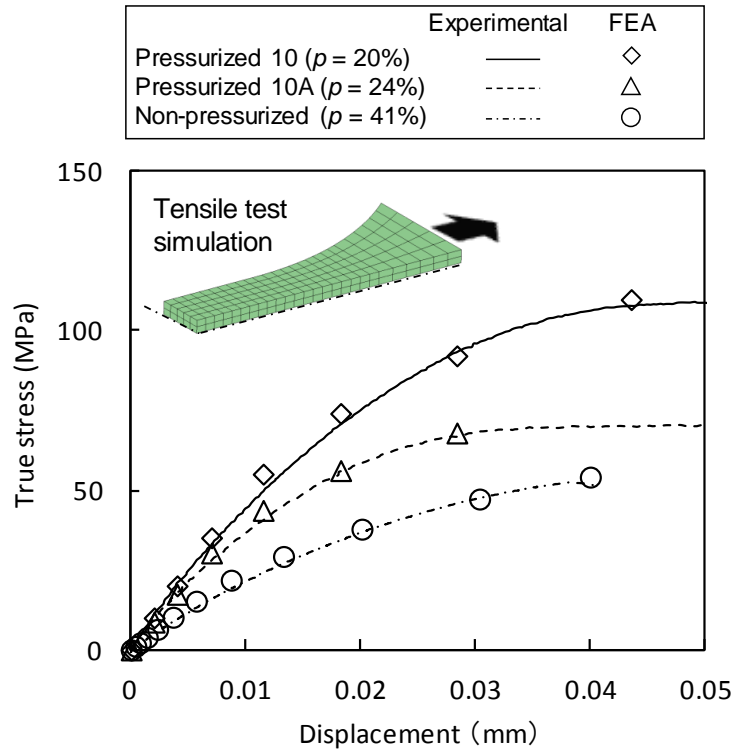


Fig. 2.7 Results of fitting to estimate macro-stress-strain relationships of sintered Ag.

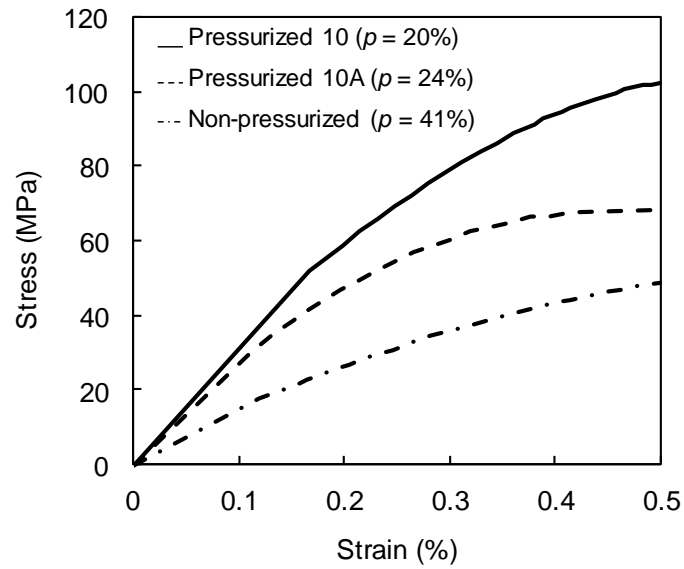


Fig. 2.8 Estimation results of macro-stress-strain relationships of sintered Ag.

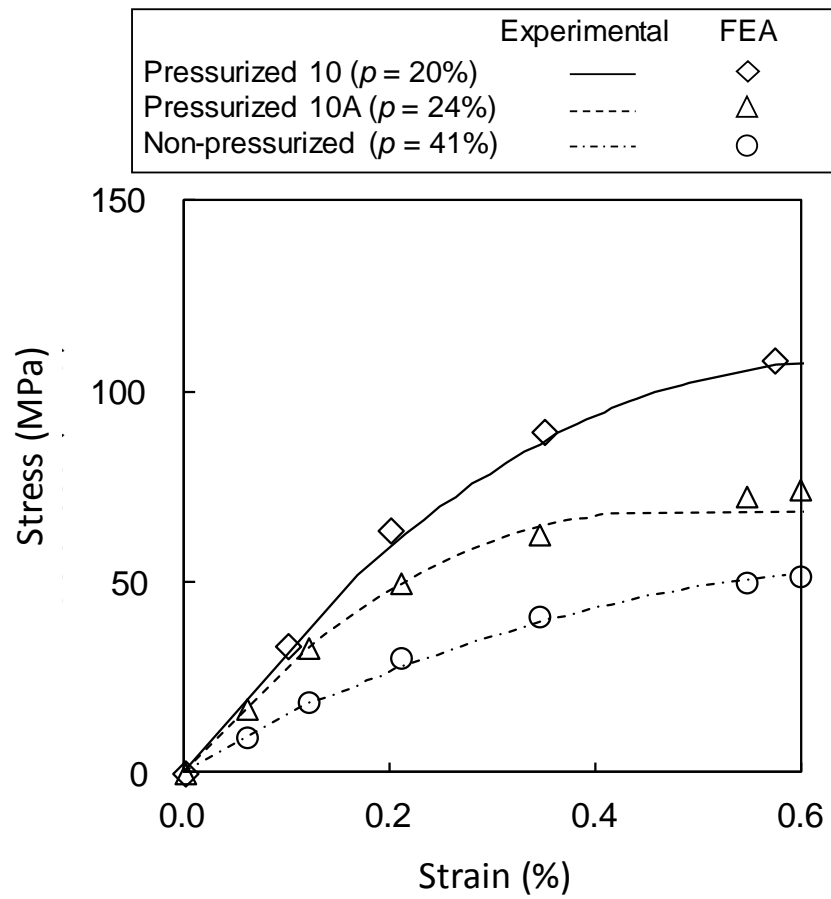


Fig. 2.9 Results of fitting to estimate micro-stress-strain relationships of sintered Ag.

実験結果と計算結果がよく一致していることが確認できる。図 2.9 のフィッティング結果をもとに、各製造条件における焼結 Ag のミクロな応力-ひずみ関係を推定した結果を図 2.10 に示す。バルク Ag の引張試験結果についても併記した。

図 2.10 を見ると、加圧 10 と無加圧は同等の推定結果となっていることがわかる。これより、加圧圧力のみが変化した場合、ミクロな Ag 部分の機械的特性は大きく変化しないことが示唆される。一方で加圧 10A は、加圧 10 および無加圧よりも早期に降伏が始まる推定結果となった。これより、Ag 部分が熱処理によって軟化していることが推察される。これは、図 2.2 に示すように熱処理によって結晶粒が粗大化したためと考えられる。これに対してヤング率は、どの条件においても約 58 GPa となり、製造条件に依存しない結果となった。ただし、バルク Ag のヤング率は約 70 GPa であり、バルク Ag よりも低い結果となった。この原因として、焼結 Ag の Ag 部分に存在する FEA でモデル化しきれていない微小な空孔や欠陥の影響が考えられる。すなわち、推定結果はこれらの微細な欠陥の影響が含まれた有効的な応力-ひずみ関係になっていると考えられる。

バルク Ag の引張試験結果は、熱処理前後で挙動が大きく異なっており、焼結 Ag の推定結果は、熱処理有無のバルク Ag の結果の中間に位置していることがわかった。これより、推定した応力-ひずみ関係は、バルク Ag で想定される範囲内に収まっており、大きく異なるものではないことが確認できた。ミクロな応力-ひずみ関係は、加圧ではなく熱処理の影響を受けていることから、製造時の熱履歴によってこの範囲のどこに位置するかが決定されることが考えられる。バルク Ag の熱処理条件を適正に制御できれば、焼結 Ag のミクロな応力-ひずみ関係を再現できる可能性はあるが、その条件を求めることは容易ではない。このため、バルク Ag の応力-ひずみ関係をそのまま焼結 Ag のミクロな応力-ひずみ関係として用いることは、現実的には難しいと考えられる。

2.4.4 ナノインデンテーション解析

前節で導出したミクロな応力-ひずみ関係の妥当性を確認するため、ナノインデンテーション試験を実施した。対象は加圧 10 とした。図 2.11 にナノインデンテーション試験によって 20 点等間隔に押し込みを実施した後の押し込み部周辺の SEM 観察結果を示す。実線の丸で囲ったものが Ag を押し込めているもの、点線の丸で囲った

ものが樹脂，もしくは Ag と樹脂の境界を押しているものに対応している。樹脂部や Ag と樹脂の境界を押していると見受けられるもの（点線）は評価から除外した。

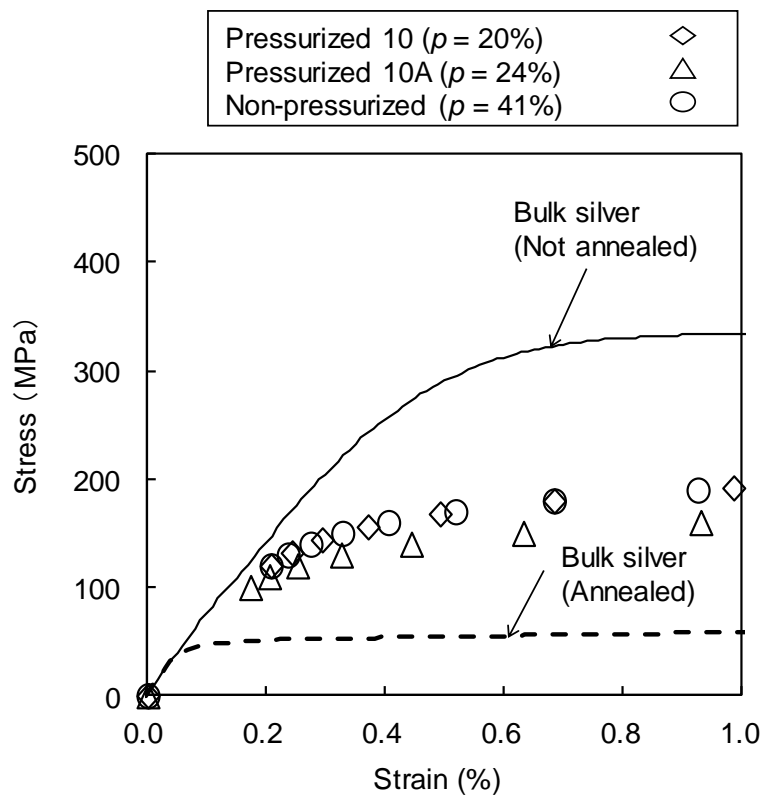


Fig. 2.10 Estimation results of micro-stress-strain relationships of sintered Ag.

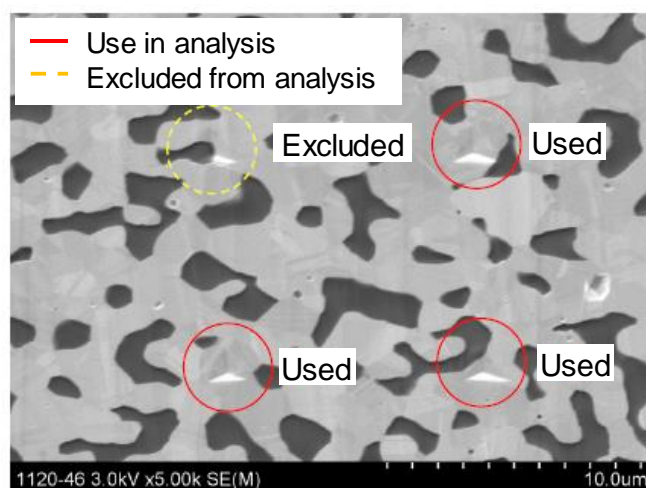


Fig. 2.11 SEM image after nanoindentation test.

押し込み荷重と押し込み変位の関係の試験結果を図 2.12 に示す。FEA によって得られた荷重-変位関係も併記した。実験によって得られた荷重-変位曲線は、大きくばらつく結果となった。押し込み変位に対する荷重が低めに現れている原因としては、押し込み位置の近傍に埋め込み樹脂や空孔が存在していた可能性が考えられる。解析結果は、実験結果のばらつきの中間位置となった。多くの実験結果は解析結果に近い傾向を示しており、前節で導出した応力-ひずみ関係が実際から大きくはずれるものではないことが確認できた。

2.4.5 応力-ひずみ関係の空孔率依存性の予測

以上の検討結果より、焼結 Ag シート材の製造条件において圧力のみ異なる場合、ミクロな Ag 部分の応力-ひずみ関係は大きく変化しないことが示唆された。これより、ある任意の製造プロセスで作製した焼結 Ag のミクロな応力-ひずみ関係を本手法で取得した場合、圧力のみ変更して緻密度を変化させた際の応力-ひずみ関係は、ミクロな多孔質構造さえ取得できればおおよそ予測することができると考えられる。しかし、緻密度の異なるミクロな多孔質構造を全て FIB-SEM で取得するのは手間がかかる。このため、二値化の際の閾値を変更することで空孔率を制御し、空孔率変化の影響を予測可能か検証した。

図 2.13 に、加圧 10 のミクロ FEA モデル（図 2.4(a)）の閾値を変更して作製した 3 種類の空孔率の FEA モデルを示す。本モデルの Ag 部分に 4.2 節で導出した応力-ひずみ関係を入力し、マクロな応力-ひずみ関係を予測した。本結果と無加圧 ($p=41\%$) における実験結果を比較して妥当性を検証した。図 2.14 に計算結果を示す。 $p=40\%$ 時の解析結果と無加圧の実験結果が一致しており、予測結果が妥当であることが確認できた。これにより、実験値のない $p=30\%$ や $p=10\%$ についてもマクロな応力-ひずみ関係を予測することが可能となった。

2.4.6 ポアソン比の空孔率依存性の予測

本材料では試験片が微小な薄板状となるため、実験によりポアソン比を取得することが難しい。このため、前節で用いたミクロモデルを用いてポアソン比の空孔率依存性を解析した。多孔質体であるため、塑性変形時にポアソン比は 0.5 にならないことから、塑性変形時の挙動も含めて解析した。

まず、弾性変形領域におけるポアソン比の空孔率依存性を計算した結果を図 2.15 に

示す。ミクロな Ag 部分に使用したポアソン比を 1 とした際の比として表した。これより、空孔率の増加に従ってポアソン比は減少することが明らかとなった。これは、空孔率の増加に伴って、全体の収縮に影響しない内部のミクロなネック部の占める割合が多くなるためである。つづいて、空孔率毎の塑性変形時の負荷ひずみと解析したポアソン比の関係を図 2.16 に示す。これより、空孔率の増加に伴いポアソン比が減少する傾向は同様となった。空孔率が低い場合、ひずみが大きくなり塑性変形することでポアソン比が 0.5 に近づくため、元のバルク材の弾性のポアソン比よりも大きくなる。一方で空孔率が高い場合は、弾性変形時と同様にミクロなネック部の変形が全体の収縮に寄与しないことから、ポアソン比が減少する方向となったと考えられる。

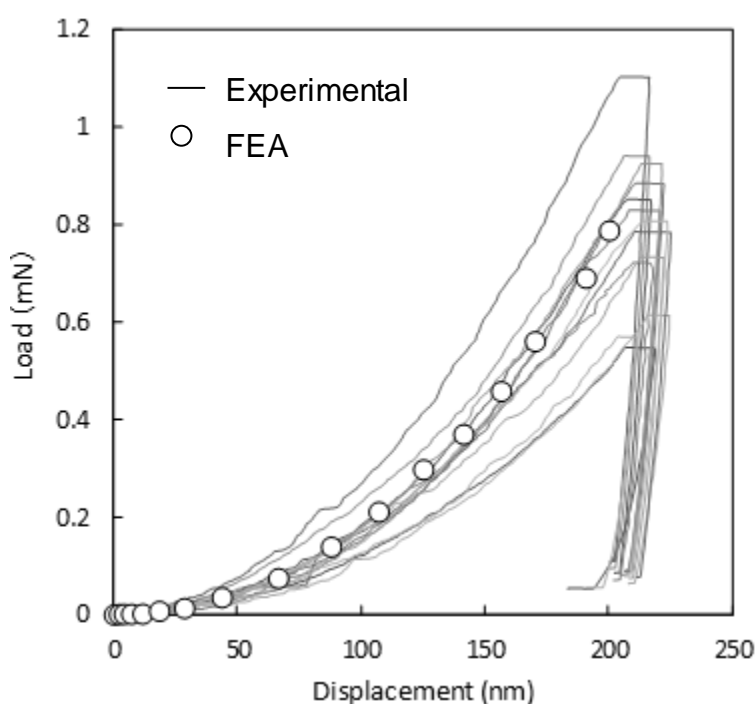


Fig. 2.12 Comparison between experimental load-displacement curves obtained from nanoindentation tests and that obtained from simulation.

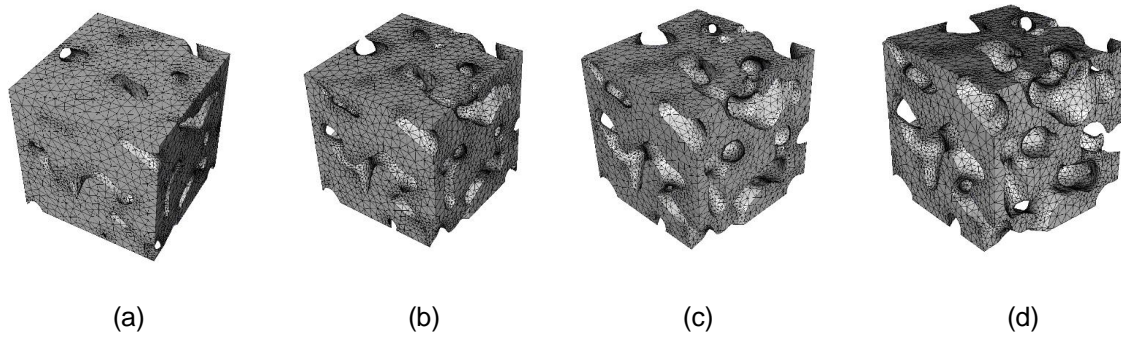


Fig. 2.13 FEA models for porosity dependence calculation: (a) $p = 10\%$, (b) $p = 20\%$, (c) $p = 30\%$ and (d) $p = 40\%$.

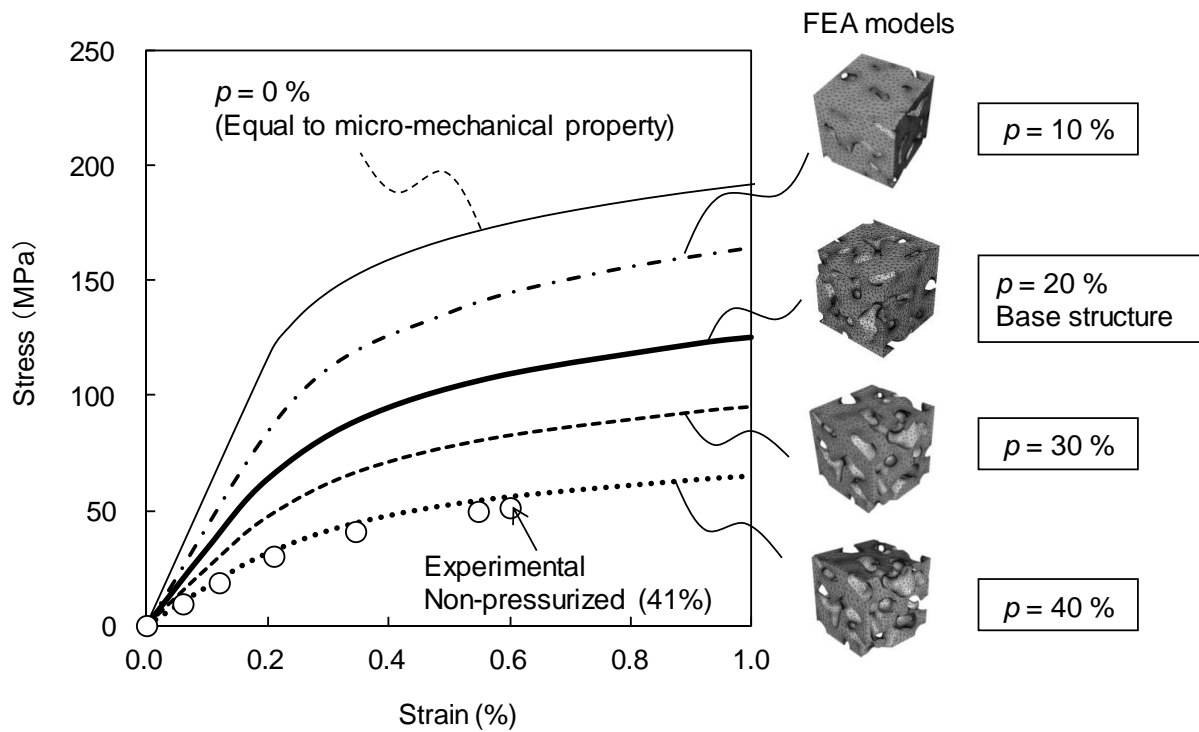


Fig. 2.14 Porosity dependence of macro-stress-strain relationship of sintered Ag.

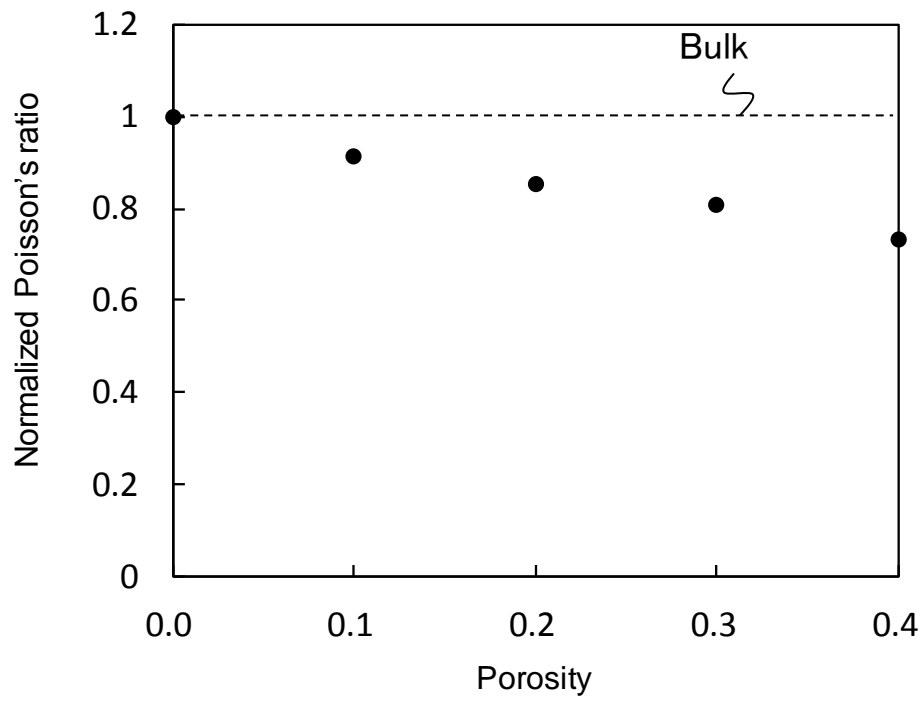


Fig. 2.15 Porosity dependence of Poisson's ratio of sintered Ag.

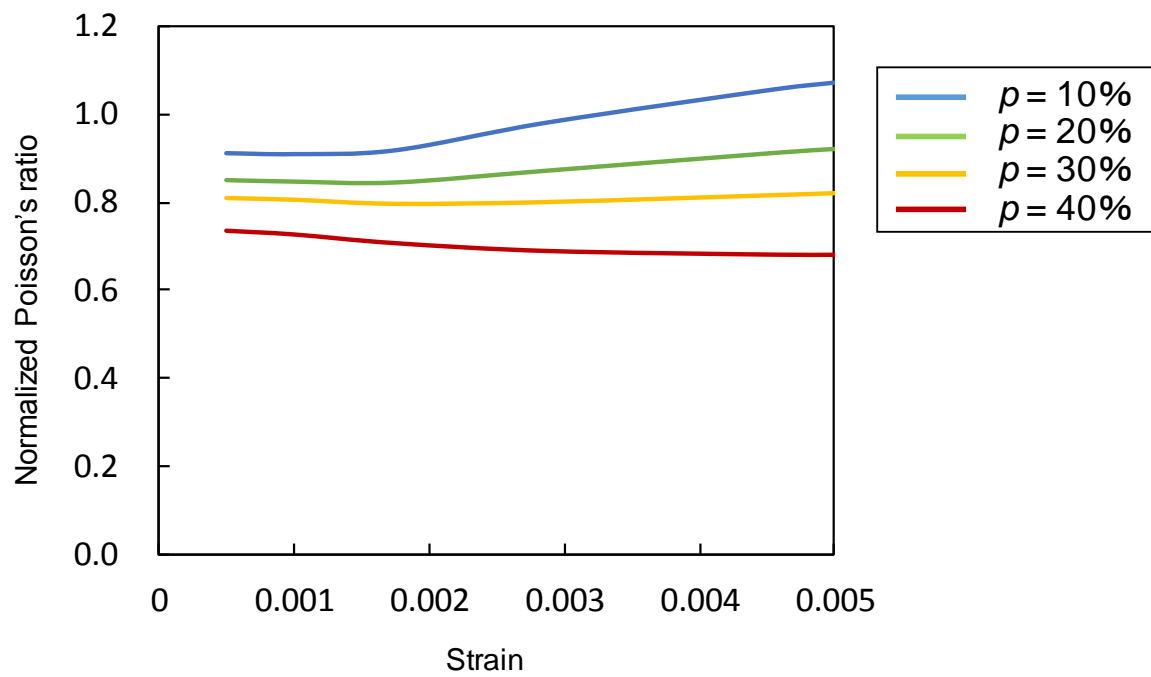


Fig. 2.16 Poisson's ratio of sintered Ag during plastic deformation.

2.5 結言

加圧圧力，熱処理条件の異なる焼結 Ag シート接合材料を対象とし，焼結 Ag の引張試験結果と，焼結 Ag のミクロな多孔質構造を再現した FEA を用いて，焼結 Ag の Ag 部分のミクロな応力-ひずみ関係を推定した。本章の結果は以下のようにまとめられる。

（１）熱処理条件が同じ場合，推定した焼結 Ag のミクロな応力-ひずみ関係は加圧圧力に大きく依存しなかった。

（２）推定した焼結 Ag のミクロな応力-ひずみ関係は，熱処理によって変化（軟化）した。

（３）推定したミクロな応力-ひずみ関係を用いたナノインデンテーション解析により得られた荷重-変位曲線は，ナノインデンテーション試験により得られた荷重-変位曲線のばらつき範囲内に収まった。

（４）推定した焼結 Ag のミクロな応力-ひずみ関係は，バルク Ag の熱処理有無の引張試験結果の中間に位置し，ヤング率はバルク Ag よりも低かった。これより，ミクロな応力-ひずみ関係としてバルク Ag の値を単純に使用することは難しい。

（５）加圧サンプルの解析モデルをベースに，閾値変更によって空孔率を変化させることで無加圧サンプルの実験結果を再現した。本結果は，任意条件のミクロな応力-ひずみ関係と多孔質構造のモデルがあれば，空孔率依存性を解析により予測できることを示唆している。

（６）ポアソン比は，空孔率増加に伴い減少する傾向が見られた。これは，全体の収縮に寄与しないミクロなネック部の占める割合が増加するためと考えられる。

2.6 参考文献

- [1] Simpleware Ltd. <http://www.simpleware.com/>.
- [2] Dassault Systemes Corp.: <http://www.3ds.com/>
- [3] W. Ramberg and W. R. Osgood, “Description of Stress-Strain Curves by Three Parameters”, National Advisory Committee on Aero-nautics, Technical Note, 902, 1943.
- [4] M. Dao, N. Chollacoop, K. J. Van Vliet, T. A. Venkatesh, S. Suresh: “Computational modeling of the forward and reverse problems in instrumented sharp indentation”: Acta Materialia, Vol. 49, Issue 19, pp. 3899–3918, 2001.

- [5] L. Min, C. Wei-min, L. Nai-gang, W. Ling-Dong: “A numerical study of indentation using indenters of different geometry”, *Journal of Materials Research*, Vol. 19, Issue 1, pp. 73-78, 2004.

第3章 焼結 Cu の機械的特性

3.1 緒言

本章では、酸化 Cu 粒子を用いた焼結 Cu 接合材を対象に、空孔部の寄与を含むマクロな応力-ひずみ関係、およびミクロな Cu 部分の応力-ひずみ関係を推定した。推定した機械特性が加圧条件や熱処理条件が異なる場合に受ける影響を評価し、任意の多孔質構造におけるマクロな応力-ひずみ関係を FEA によって予測可能か検証した。推定の手順を図 3.1 に示す。最初に、引張試験結果に一致するように FEA の弾塑性パラメータをフィッティングすることでマクロな応力-ひずみ関係を導出した。次に推定したマクロな応力-ひずみ関係と一致するようにミクロな多孔質構造を再現したモデルを用いた FEA の弾塑性パラメータをフィッティングすることで、ミクロな応力-ひずみ関係を導出した。導出結果を焼結 Ag と比較した。

3.2 実験方法

3.2.1 試験片の準備

試験に用いた焼結 Cu の試験片は次の手順で準備した。まず、酸化 Cu 粒子（平均粒径 200 nm）と有機溶剤からなる酸化 Cu ペーストを SUS プレート上にメタルマスクとスキージを用いて短冊型に塗布した。次に、SUS プレートを 80℃で約 20 分乾燥させた。つづいて、350℃で 15 分間、水素雰囲気中で加圧焼成を行った。加圧は、加圧治具により所定の加圧力になるまでボルト締めすることで実施した。加圧条件は、約 4 MPa で加圧したもの（以下、加圧 4 と記す）と約 13 MPa で加圧したもの（以下、加圧 13 と記す）の 2 種類とした。焼成後に SUS プレートから取り外し、周囲のバリを研磨などで取り除くことで短冊状の試験片を得た。なお、加圧は手動のボルト締めで実施しているため、表記の加圧の圧力は目安である。作製した薄板を次に示す手順で加工してダンベル試験片を作成した。まず、試験片の錆びを抑制する目的で試験片表面に防錆剤を塗布した。その後、ワイヤ放電加工によって図 3.1(a)の形状に加工し、加工断面の酸化除去のため、水素雰囲気中で 260℃、5 分、無加圧で還元処理を実施した。試験片の寸法値を表 3.1 に示す。 w_p は平行部の幅、 L_p は平行部の長さ、 t は平行部の厚さ、 R はネックの曲率半径である。 t と w_p はマイクロメータによって測定し、

測定値から断面積 A を算出した。

焼結 Cu と比較するため、純 Cu 棒材（以下、Cu バルク材と記す）についても準備した。棒材は JIS Z 2241 14 号試験片に従った形状に加工した（標点間距離 = 30 mm, $\phi = 6$ mm）。

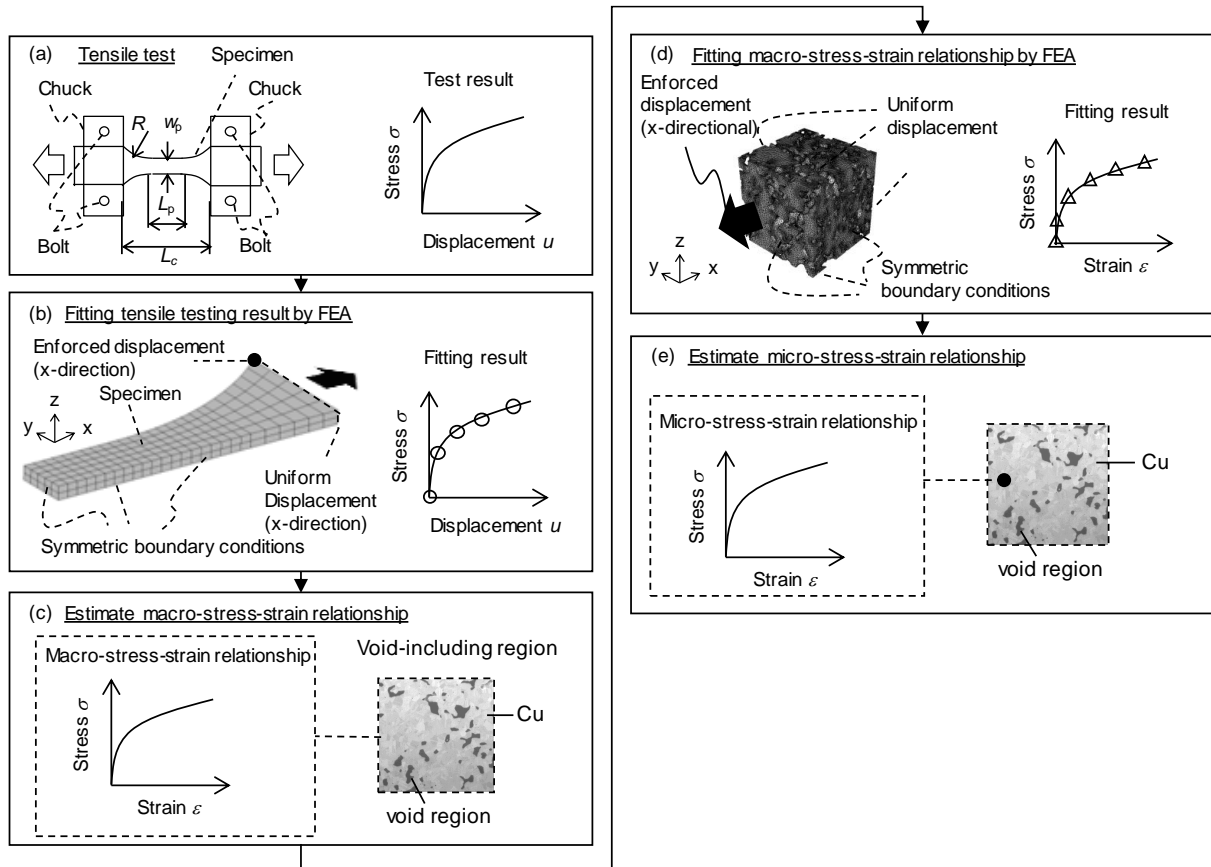


Fig. 3.1 Flow chart of estimation method for stress-strain relations of sintered Cu specimens.

Table 3.1 Dimensions of sintered Cu specimens.

Condition name	w_p (mm)	L_p (mm)	t (mm)	R (mm)	L_c (mm)
Pressurized 4	0.85-0.86	1.5	0.23-0.49	3.6	5.3
Pressurized 13	0.84-1.07	1.5	0.17-0.18	3.6	5.5

3.2.2 微視構造の観察

焼結 Cu 材内部のミクロな多孔質構造を確認するため、FIB-SEM によって連続的な断面画像を取得した。空孔部と金属部の境界を明確にするために、前処理として試験片の観測位置周辺にエポキシ樹脂を充填し約 100°C で熱硬化させた。その後、観察領域の表面に保護膜 (C デポジション) を堆積させ、保護膜周辺の領域を FIB 加工で除去し、対象断面に対して自動で FIB 加工と SEM 像取得を繰り返し実施した。

加工および観察には、FEI 社製 Dualbeam System Nova200 Nano-lab を使用した。FIB 加速電圧は 30 kV とした。SEM の加速電圧は 2 kV、観察倍率は 3500 倍とした。観察角度は 52° とした。観察位置は試験片の中心位置とした。観察領域は、 $x = 10 \sim 20 \mu\text{m}$ 、 $y = 10 \sim 20 \mu\text{m}$ とし、各断面の間隔を $0.1 \mu\text{m}$ として 100 スライス分を取得した。取得した SEM 画像の一例を図 3.2 に示す。加圧 4 はばらつきが大きいことが予想されたため 2 サンプル分を取得し、加圧 13 は 1 サンプル分を取得した。図 3.2 より、加圧 4 に比べ加圧 13 は空孔が少なく独立孔が多く見られ、加圧により焼結密度が向上していることがわかる。結晶粒径は約 $1 \mu\text{m}$ 程度と推定される。

各試験片において三次元的な多孔質構造および空孔率を取得するため、取得した連続断面画像から 3 次元 CAD モデルを再構成した。変換には、汎用 3 次元画像変換ソフト Simpleware[1]を使用した。画像を二値化して Ag 領域と空孔領域を区別した。SEM 画像のボクセルサイズは、観察視野が $10 \mu\text{m}$ の場合、 $x = 17.9 \text{ nm}$ 、 $y = 22.7 \text{ nm}$ 、 $z = 100 \text{ nm}$ 、観察視野が $20 \mu\text{m}$ の場合、 $x = 35.73 \text{ nm}$ 、 $y = 45.3 \text{ nm}$ 、 $z = 100 \text{ nm}$ である。FIB-SEM 結果を用いて、三次元構造を作成した結果を図 3.3 に示す (加圧 4 は一例)。Simpleware で算出した空孔率 p は、加圧 4 が約 25~36%、加圧 13 が約 10%であった。

3.2.3 引張試験

3.2.1 節で作製した焼結 Cu 試験片のマクロな応力-ひずみ関係を把握するため、荷重-変位関係を引張試験によって取得した。試験には、鷺宮製作所製の微小荷重疲労試験機 (LMH207-10) を用いた。試験は、大気中常温にて実施した。図 3.1 (a)に示すように持ち手部を平板型のチャックで固定した。チャックの締め付けトルクは $20 \text{ cN} \cdot \text{m}$ とした。試験は変位制御によって実施し、チャック間の変位を微小変位計によって計測した。試験速度はひずみ速度が $2.5 \times 10^{-3} / \text{s}$ となるようにストローク速度を調整し、

0.006 mm/s と設定した。サンプル数は、加圧 4 が 5 本、加圧 13 が 3 本として破断まで実施した。公称応力 σ は荷重 P と断面積 A より、次式で算出した。

$$\sigma = \frac{P}{A} \quad (3.1)$$

バルク材の引張試験は、JIS Z 2241(2011)に従い大気中常温にて実施した。ひずみ速度は $1 \times 10^{-4}/s$ とした。ひずみはひずみゲージにより測定した。

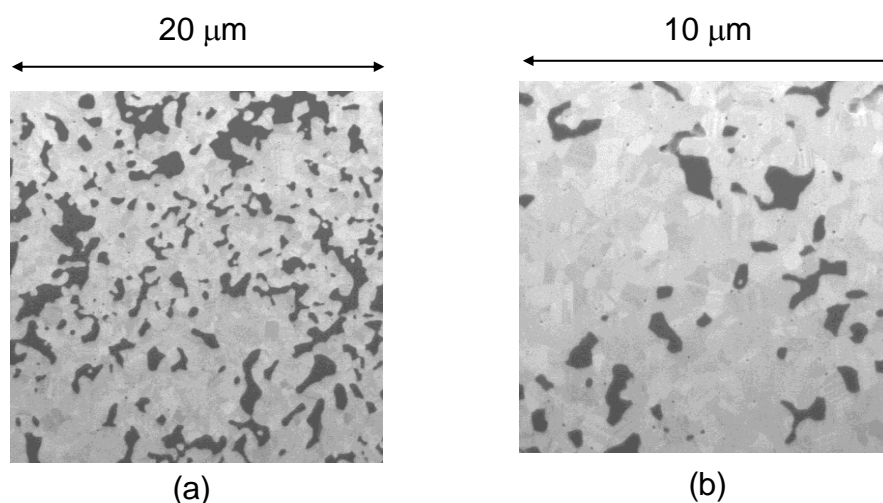


Fig. 3.2 FIB-SEM images of sintered Cu specimens: (a) pressurized 4 and (c) pressurized 13.

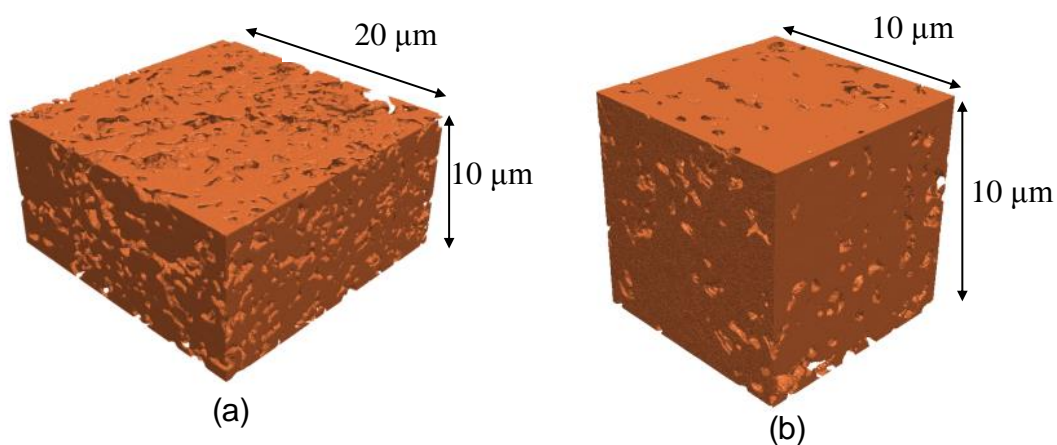


Fig. 3.3 3D-CAD models of sintered Cu specimens: (a) pressurized 4 ($p = 25\%$) and (c) pressurized 13 ($p = 10\%$).

3.3 解析方法

3.3.1 マクロな応力-ひずみ関係の推定

焼結 Cu の引張試験では、試験片が微小な薄板状となり、ひずみゲージによるひずみの測定が困難であった。このため、焼結 Cu の応力-ひずみ関係は、試験片の寸法を再現した FEA モデルを作成し、実験の荷重-変位関係を再現するようにして求めた。FEA モデルの一例を図 3.1(b)に示す。表 3.1 に示す寸法に従い、チャック部間の試験片形状を FEA モデルで再現した。対称性を考慮し、全体の 1/8 の領域をモデル化した。チャック部は、解析モデルの端部に一様変位の境界条件を設定することでモデル化した。試験片部分を六面体 2 次要素で分割し、試験片長手方向に強制変位を与えて荷重と変位の間係を取得した。ソルバーは汎用 FEA ソフト Abaqus/Standard version 6.13[2]を用いた。

焼結 Cu 試験片の応力-ひずみ関係は多直線近似等方弾塑性体モデルを用いて表した。塑性変形領域における挙動は、次式に示す Ramberg-Osgood 則[3]により表した。

$$\frac{\varepsilon}{\varepsilon_0} = \frac{\sigma}{\sigma_0} + \alpha \left(\frac{\sigma}{\sigma_0} \right)^n \quad (3.2)$$

ここで ε_0 , σ_0 , α , n は材料定数である。マクロなポアソン比（空孔部の寄与を含む）は解析結果に大きく影響しないため、仮定値として 0.25 を用いた。詳細な値は次節に示す方法で確認した。

3.3.2 ミクロな応力-ひずみ関係の推定

前節で推定したマクロな応力-ひずみ関係と、ミクロな多孔質構造を再現した FEA によって計算された応力-ひずみ関係が一致するように、FEA のミクロな応力-ひずみ関係を求めた。3DCAD モデルから変換して作成した FEA モデルを図 3.4 に示す。3.2.2 節で作製した 3DCAD モデルの一部分を切り出し、四面体 2 次要素のメッシュで分割した。対称境界条件をモデルの片側に付与し、反対側を一様変位境界条件として強制変位を x 方向（試験片の負荷方向）に与えた。また、解析初期における強制変位節点の x 方向変位と z 方向、y 方向の変位の平均値の関係からマクロなポアソン比を求めた。解析規模が比較的大きいことから、ソルバーは大規模問題を高速に計算可能な ADVENTURECluster version 2014[4]を使用した。

焼結 Cu のミクロな応力-ひずみ関係は、多直線近似等方弾塑性体モデルとした。

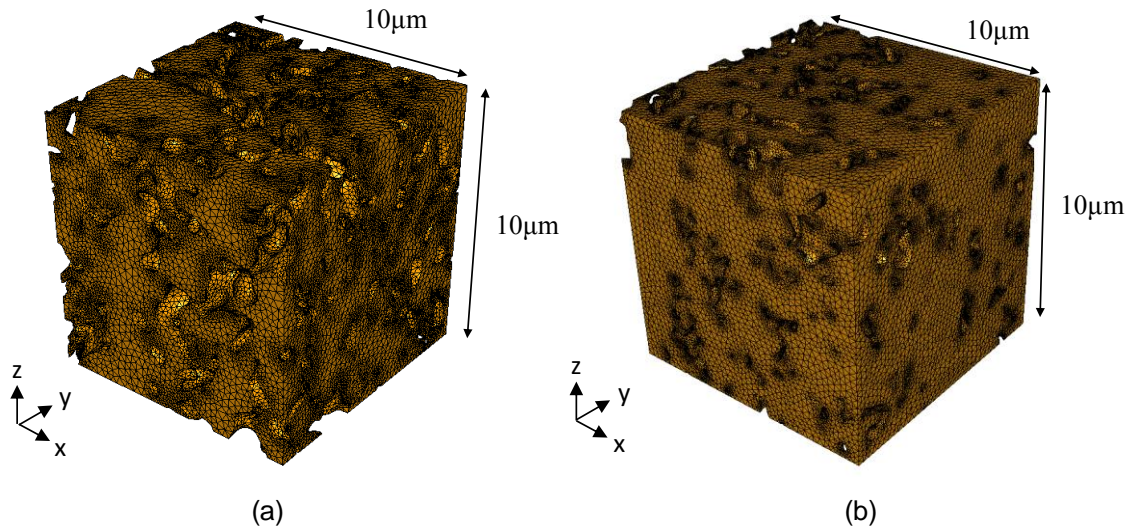


Fig. 3.4 FEA models of microscopic sintered structures for tensile analysis: (a) pressurized 4 ($p = 25\%$) and (b) pressurized 13 ($p = 10\%$).

塑性変形領域の挙動は式(3.2)により表した。ミクロなポアソン比（空孔部の寄与を除く）は、本計算では結果に大きく影響しないことから、金属材料の一般的な値として 0.3 を用いた。

3.4 結果と考察

3.4.1 引張試験

焼結 Cu の引張試験より得られた応力-変位曲線を図 3.5 に示す。加圧 4 の応力-変位曲線は、加圧 13 に比べてばらつきが大きい結果となった。これは、手動でボルト締めしたことによる加圧圧力の違いに起因していると考えられる。加圧 4 の引張強度は 120~180 MPa, 加圧 13 の引張強度は 260~280 MPa となった。加圧 4 の引張強度は加圧 13 の約半分となり、空孔率の大小関係に対応する結果となった。

3.4.2 マクロな応力-ひずみ関係の推定

3.3.1 節に記載した方法により、焼結 Cu の空孔を含むマクロな応力-ひずみ関係を推定した。まず、応力-変位曲線の実験値と解析値をフィッティングした結果を図 3.6 に示す。ばらつきの最大最小値をフィッティングに用いた。これより、計算結果と実験結果はよく一致していることがわかる。つづいて、図 3.6 のフィッティング結果をもとに、各製造条件における焼結 Cu のマクロな応力-ひずみ関係を推定した結果を図

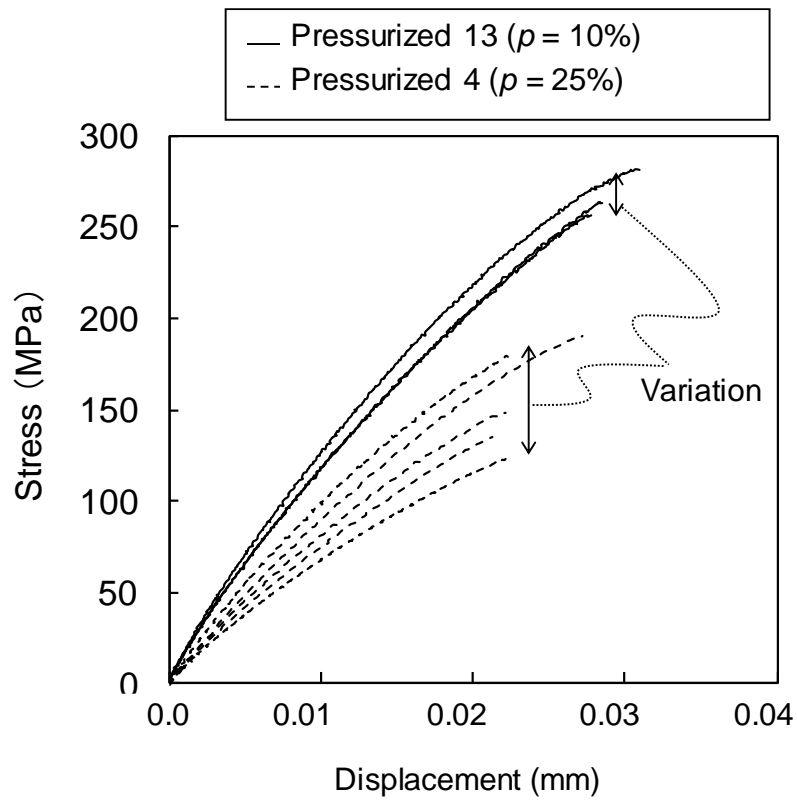


Fig. 3.5 Results of tensile tests of sintered Cu.

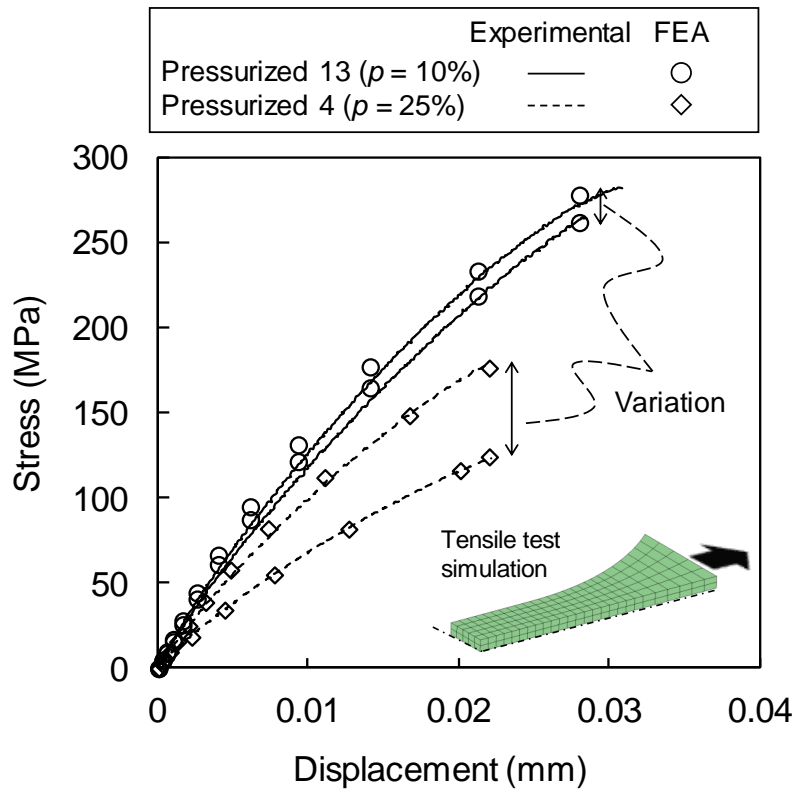


Fig. 3.6 Results of fitting to estimate macro-stress-strain relationships of sintered Cu.

3.7 に示す。加圧 4 のヤング率 E は約 40~50 GPa となった。一方で加圧 13 のヤング率は約 70~80 GPa となった。Ramberg-Osgood 則の材料定数を表 3.2 に示す。 σ_0 は 0.2%耐力に対応している。加圧 13 の 0.2%耐力は加圧 4 の約 1.2~1.8 倍である。

3.4.3 ミクロな応力-ひずみ関係の推定

3.3.2 節で示した方法によって、焼結 Cu の空孔部を除く Cu 部分におけるミクロな応力-ひずみ関係を推定した。加圧 4 のばらつきが大きかったため、推定にはばらつきの少ない加圧 13 の結果を用いることとした。前節ですでに推定した焼結 Cu のマクロな応力-ひずみ関係と FEA による計算結果をフィッティングした結果を図 3.8 に示す。これより、実験結果と計算結果がよく一致していることが確認できる。図 3.8 のフィッティング結果をもとに、焼結 Cu のミクロな応力-ひずみ関係を推定した結果を図 3.9 に示す。バルク Cu と前章で求めた焼結 Ag の応力-ひずみ関係も併記した。焼結 Cu のミクロな Cu 部分のヤング率は約 95 GPa となった。Ramberg-Osgood 則の材料定数を表 3.3 に示す。バルク Cu のヤング率は約 130 GPa であるため、焼結 Cu の Cu 部分のヤング率はバルクと比較して多少低い結果となった。この一因としては、焼結 Ag の際にも言及したように、FEA でモデル化しきれていない微小な空孔や欠陥の影響が考えられる。

焼結 Cu の Cu 部分の 0.2%耐力は 265 MPa となり、バルク Cu の 0.2%耐力約 370 MPa よりも低くなった。バルク Cu の 0.2%耐力は熱処理条件によって大きく異なることが知られている。例えば、完全焼き鈍しされた無酸素 Cu の場合、0.2%耐力は約 200 MPa と報告されている[5]。これより、焼結 Cu の 0.2%耐力は、前章で示した焼結 Ag の場合と同様に、熱処理有無のバルク Cu の間に位置していると考えられる。したがって、推定結果はバルク Cu で想定される範囲内に収まっており、現実と大きく異なるものではないことが確認された。焼結 Ag の場合と同様に、Cu 部分の応力-ひずみ関係は、製造時の熱履歴に依存して、バルク Cu の範囲内で変化すると考えられる。また、焼結 Cu を焼結 Ag と比較した場合、焼結 Cu の応力-ひずみ関係は焼結 Ag よりも上に位置しており、ヤング率、0.2%耐力のいずれにおいても焼結 Cu の方が高いことがわかる。これより、ミクロな金属緻密部における機械特性は、焼結 Ag に比べて焼結 Cu の方が優れていることがわかった。

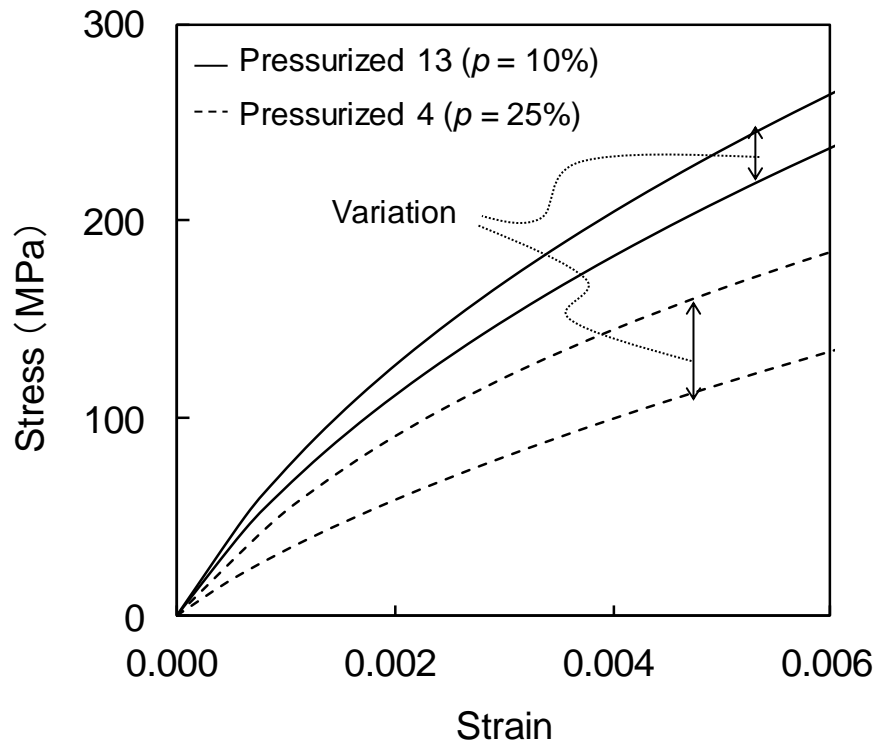


Fig. 3.7 Estimation results of macro-stress-strain relationships of sintered Cu.

Table 3.2 Material constants of Ramberg-Osgood relationship for macro-stress-strain relations.

Condition name	σ_0 (MPa)	ε_0 ($\times 10^{-3}$)	α ($\times 10^{-1}$)	n
Pressurized 4	125-170	3.15-3.47	5.76-6.35	2.1-2.2
Pressurized 13	210-230	2.88-3.00	6.67-6.96	1.9-2.5

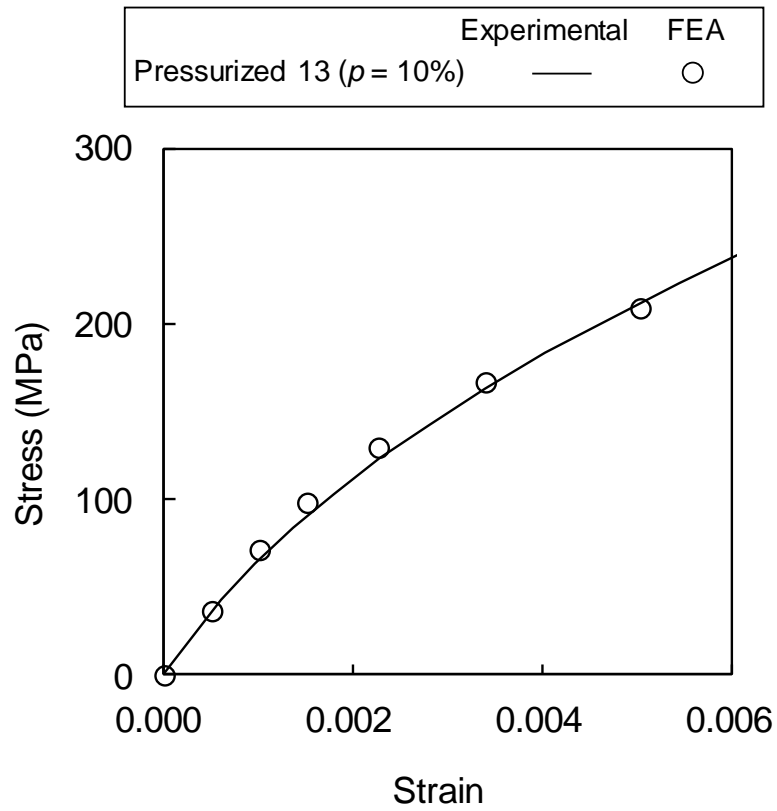


Fig.3.8 Results of fitting to estimate micro-stress-strain relationship of sintered Cu.

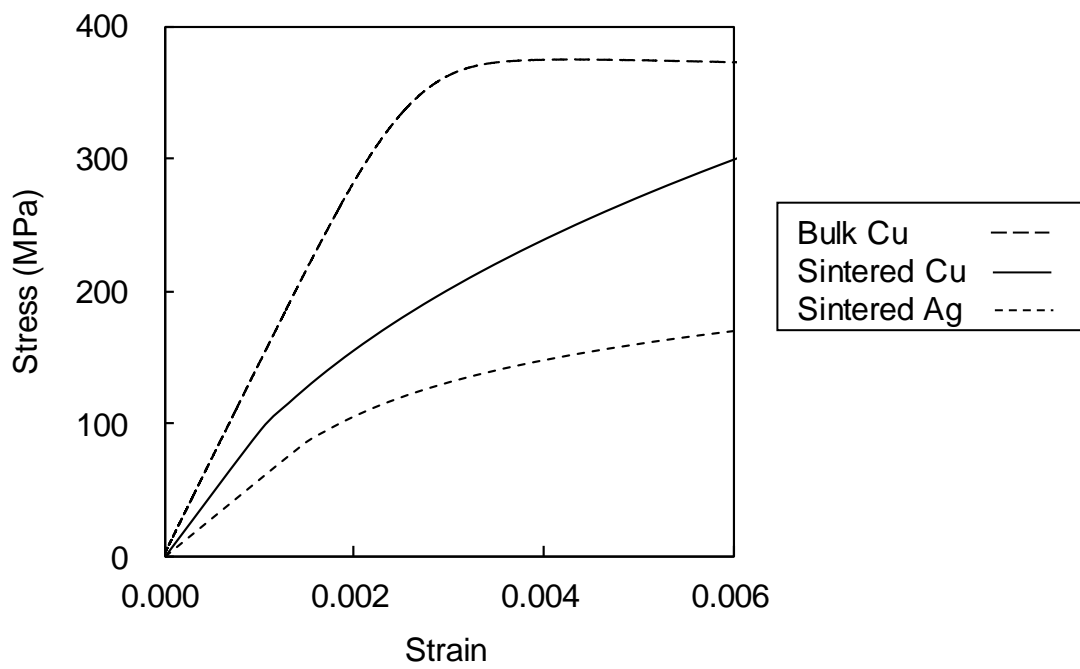


Fig. 3.9 Estimated micro-stress-strain relationships of sintered Cu and sintered Ag.

Table. 3.3 Material constants of Ramberg-Osgood relationship for micro-stress-strain relationship.

σ_0 (MPa)	ε_0 ($\times 10^{-3}$)	α ($\times 10^{-1}$)	n
265	2.79	7.17	2.5

3.4.4 応力-ひずみ関係の空孔率依存性の予測

焼結 Ag の場合と同様に，焼結 Cu においても空孔率を制御したミクロな多孔質モデルを用いて，マクロな応力-ひずみ関係の空孔率依存性を計算した。SEM 画像から 3 次元モデルに変換する際の二値化の閾値を変更することで，FEA モデルの空孔率を制御した。加圧 13 のモデルは空孔率が低く独立孔を多く含むため閾値変化により連続孔を再現しにくい。このため，基本モデルとしては加圧 4 の FEA モデル (図 3.4(a)) を選択した。Cu 部分のミクロな応力-ひずみ関係は，前節で推定した結果を用いた。

図 3.10 に，加圧 4 のミクロ FEA モデルの閾値を変更して作製した 3 種類の空孔率の FEA モデルを示す。本モデルを用いてマクロな応力-ひずみ関係を計算し，ヤング率と 0.2%耐力の空孔率依存性を求めるとともに，解析結果を実験結果や前章で求めた焼結 Ag の結果と比較した。図 3.11 に比較結果を示す。これより，ミクロな応力-ひずみ関係を空孔率毎に変化させることなく，解析結果が実験結果を再現することが示された。前章において焼結 Ag のミクロな応力-ひずみ関係が加圧によって大きくかわらないことが示唆されていたが，本結果より焼結 Cu についても焼結 Ag と同様の傾向を有すると考えられる。以上より，焼結 Ag および焼結 Cu の加圧変化による空孔率変化の影響をシミュレーションによってある程度予測できることが示された。

図 3.11 より，同じ空孔率で比較した場合に，マクロなヤング率や 0.2%耐力は焼結 Cu の方が焼結 Ag よりも高くなる。すなわち，パワーモジュールで要求される機械的特性を達成する場合に，焼結 Cu は焼結 Ag と比較して空孔率を高くすることが可能となる。換言すれば，焼結 Cu では焼結 Ag に比べて加圧を低くすることが可能となるということである。加圧が高くなると，半導体素子などの周辺部材にダメージが生じるリスクが高まり，パワーモジュールの製造上好ましくないため，焼結 Cu は焼結 Ag よりもこの点において優位であると考えられる。

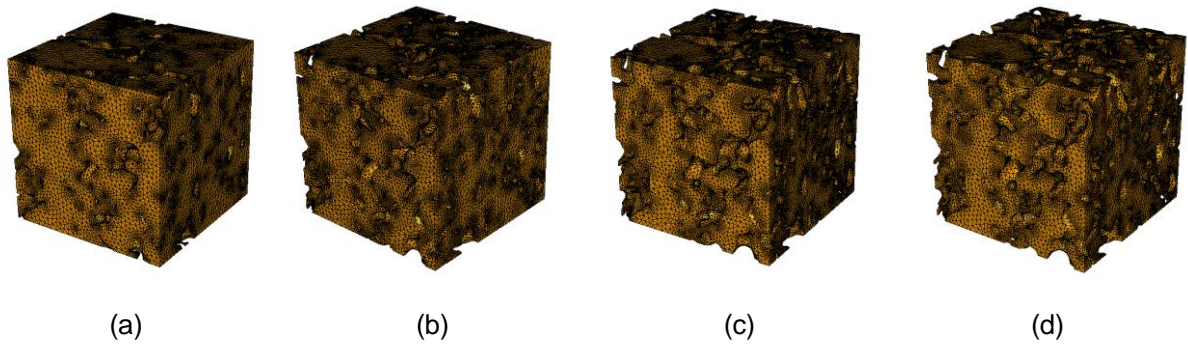


Fig. 3.10 FEA models for porosity dependence calculation: (a) $p = 10\%$, (b) $p = 18\%$, (c) $p = 25\%$ and (d) $p = 34\%$.

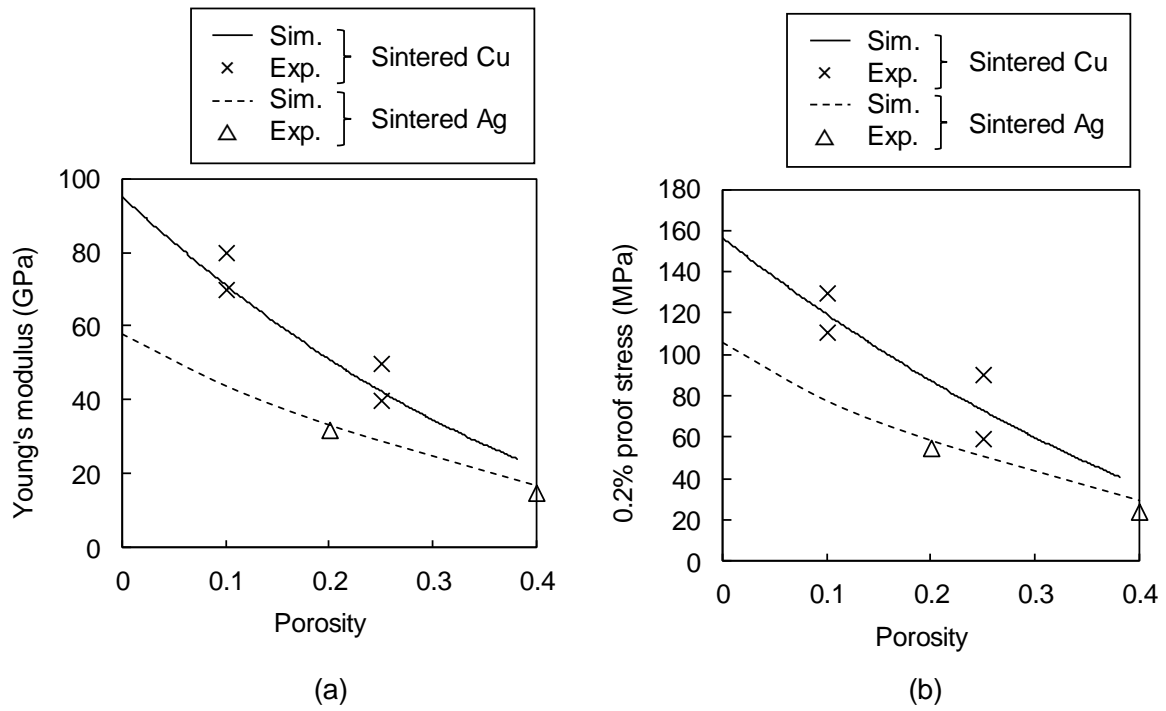


Fig. 3.11 Calculated and experimental porosity dependence of macro-stress-strain relationships of sintered metals: (a) Young's modulus, (b) 0.2% proof stress.

3.4.5 ポアソン比の空孔率依存性の予測

焼結 Ag の場合と同様に、前節で用いたマイクロな FEA モデルにより、ポアソン比の空孔率依存性を解析した。図 3.12 に弾性変形領域におけるポアソン比の空孔率依存性を計算した結果を示す。マイクロな Cu 部分に使用したポアソン比を 1 とした際の比として表した。これより、焼結 Ag の場合と同様に、空孔率の増加に従ってポアソン比は減少することが明らかとなった。これは、すでに述べたように、空孔率の増加に伴って、全体の収縮に影響しない内部のマイクロなネック部の占める割合が多くなるためである。図 3.13 に空孔率毎の塑性変形時のひずみとポアソン比の関係を示した。こちらも焼結 Ag の場合と同様に、空孔率の増加に伴いポアソン比が減少する傾向となった。空孔率が低い場合、ひずみが大きくなり塑性変形することでポアソン比が 0.5 に近づくため、元のパルク材の弾性のポアソン比よりも大きくなる。一方で空孔率が高い場合は、弾性変形時と同様にマイクロなネック部の変形が全体の収縮に寄与しないことから、ポアソン比が減少する方向となったと考えられる。

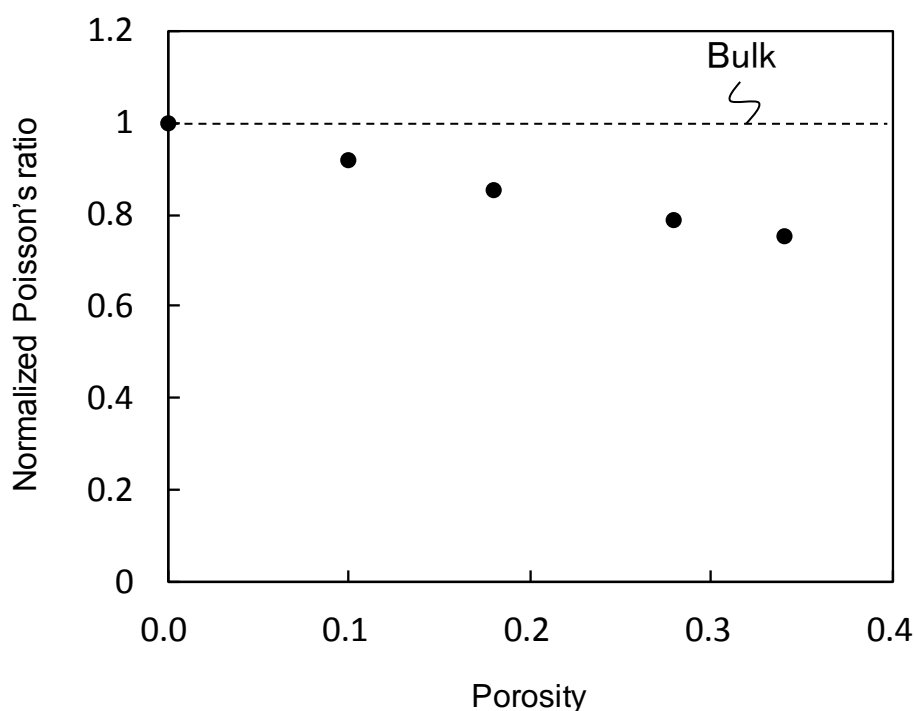


Fig. 3.12 Porosity dependence of Poisson's ratio of sintered Cu.

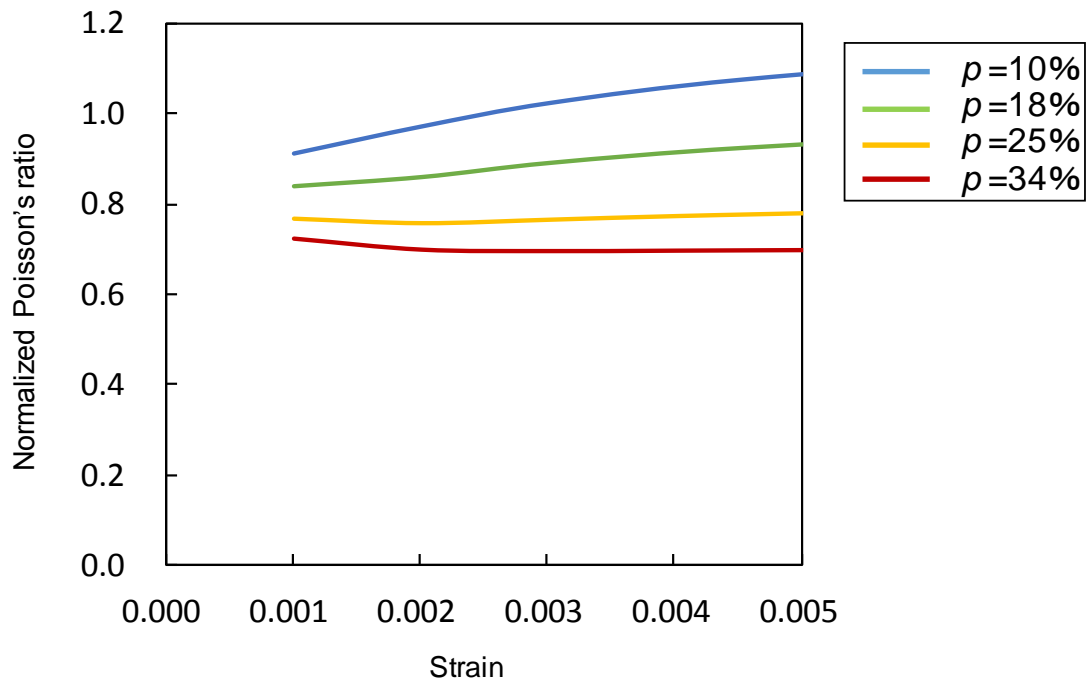


Fig. 3.13 Poisson's ratio of sintered Cu during plastic deformation.

3.5 結言

加圧圧力の異なる焼結 Cu 接合材料を対象とし、焼結 Cu の引張試験結果と、焼結 Cu のミクロな多孔質構造を再現した FEA を用いて、焼結 Cu の Cu 部分のミクロな応力-ひずみ関係を推定し、焼結 Ag と比較した。本章の結果は以下のようにまとめられる。

(1) 引張強度は、4 MPa で加圧した試験片で約 120~180 MPa、13 MPa で加圧した試験片で約 260~280 MPa であった。

(2) ヤング率は、4 MPa 加圧の試験片で約 40~50 GPa、13 MPa 加圧の試験片で約 70~80 GPa であった。

(3) ミクロな Cu 部分のヤング率は約 95 GPa であり、バルク Cu のヤング率よりも低く、焼結 Ag の Ag 部分のヤング率より高くなった。

(4) 同じ空孔率で比較した場合、焼結 Cu の方が焼結 Ag よりもマクロなヤング率および 0.2% 耐力が高くなった。これは、焼結 Cu は焼結 Ag に比べて高い空孔率でも要求強度を達成することができることを示している。

(5) マクロなポアソン比は、空孔率増加に伴い減少した。これは、全体の収縮に寄

与しないミクロなネック部の占める割合が増加するためである。

3.6 参考文献

- [1] Simpleware Ltd. <http://www.simpleware.com/>.
- [2] Dassault Systemes Corp.: [http://www.3ds.com /](http://www.3ds.com/).
- [3] W. Ramberg and W. R. Osgood, “Description of Stress-Strain Curves by Three Parameters”, National Advisory Committee on Aero-nautics, Technical Note, 902, 1943.
- [4] Allied Engineering Corp.: <http://www.alde.co.jp/english/advc/index.html>.
- [5] 東洋サクセス株式会社 : <http://www.toyo-success.co.jp/product/characteristic.html>.

第4章 焼結 Ag の疲労特性

4.1 緒言

パワーモジュールの接合材には、稼働時の温度変化と周辺材料の熱膨張係数差によって熱応力が発生する。この熱応力によって接合材が疲労破壊すると、熱抵抗が上昇しチップの熱破壊などの故障につながるため、接合材の疲労破壊防止が求められる。疲労破壊防止のためには、接合材の疲労特性の把握が非常に重要な課題となる。これまで述べてきたように、マイクロ Ag 粒子を用いた焼結 Ag 接合技術は高温パワーモジュール向けの接合技術として期待されているが、その疲労特性に関してはわかっていないことが多い。

そこで本章では、マイクロ Ag 粒子を用いた焼結 Ag 接合材を対象に疲労試験を実施し、疲労特性の負荷様式依存性、加圧依存性、熱処理依存性を評価した。また、多孔質構造を再現したミクロな解析モデルを用いて疲労試験時の焼結材内部のミクロなひずみ分布を解析し、破面観察結果と比較することで、破壊がどのように生じているかを考察した。

4.2 実験方法

4.2.1 試験片の作製方法

マイクロ Ag 粒子からなるペースト材を予備焼結して作製した焼結 Ag シートを試験片として用いた。マイクロ Ag ペーストは、平均粒径約 3 μm の Ag フレーク材 (AgC-239, 福田金属箔粉工業株式会社) と有機溶剤 (ジエチルグリコールメチルエーテルアセテートテルピネオール, 90wt. %) から成る。焼結 Ag シート材は、以下に示す手順で作製した。まず、マイクロ Ag ペースト材をテフロン加工された SUS プレート上に塗布する。次に、乾燥工程 (110°C で 30 分, 180°C で 30 分) の後、250°C で 1 時間の予備焼結を大気中にて行う。自然空冷後に作製した焼結 Ag シートをプレート分離し、長方形にカットする。最後に得られた試験片を表 4.1 に示す 3 種類の条件で本焼結した。1 番目の条件は 300°C で 10 MPa, 10 分加圧したもの (以下, 加圧 10 と記す), 2 番目の条件は、本焼結前に 300°C で 6 時間熱処理を行い、その後 300°C で 10 MPa, 10 分加圧したもの (以下, 加圧 10A と記す), 3 番目の条件は加圧せずに 300°C で 10

Table 4.1 Manufacturing conditions.

Condition name	Annealing	Pressure (MPa)	Temperature (°C)	Time (min)
Pressurized 10	-	10	300	10
Pressurized 10A	300°C 6 hours			
Non-pressurized	-			

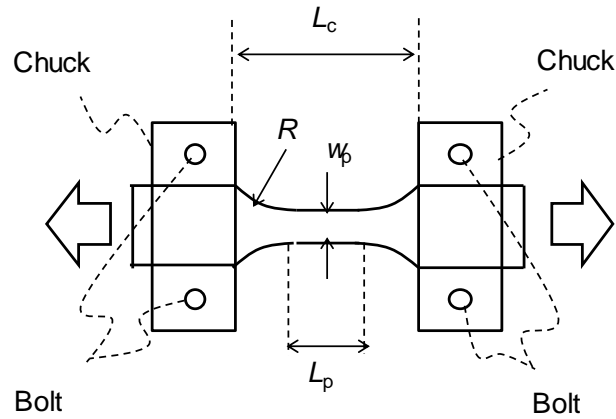


Fig. 4.1 Shape of sintered Ag specimen.

分焼成したもの（以下，無加圧と記す）である。試験片は，図 4.1 に示す形状に放電ワイヤ加工によって加工した。圧縮を含む試験に用いる試験片は座屈しないように通常より厚く（1 mm 程度）作成した。作製した試験片の寸法を表 4.2 に示す。長さ l ，幅 w ，厚さ t ，平行部の幅 w_p ，平行部長さ l_p ，チャック間距離 L_c とする。

4.2.2 疲労試験方法

焼結 Ag の疲労試験は，鷺宮製作所製の微小荷重疲労試験機（LMH207-10）を用いて，大気中常温にて実施した。試験速度は 5 Hz とした。試験片が完全に分離破断するまでの繰り返し数を疲労寿命と定義した。試験は 10^5 回で打ち切りとした。治具間の微小変位を微小変位センサ（静電容量式）により測定した。

疲労試験は，①加圧有無との比較をする試験，②負荷様式の影響を評価する試験，③試験片厚さおよび熱処理の影響を評価する試験の 3 通り行った。それぞれの試験の試験条件を表 4.3 に示す。①は両振り試験とし，試験片は圧縮時に座屈しないよう厚

Table 4.2 Dimensions of specimens.

Condition name	w_p (mm)	L_p (mm)	t (mm)	R (mm)	L_c (mm)
Pressurized 10 (R=-1, thick)	1.02	2.0	0.98-1.00	3.0	6.6
Pressurized 10 (R=1, thick)	1.03	2.0	1.04	3.0	6.5
Pressurized 10 (R=0, thick)	1.03	2.0	0.99	3.0	6.5
Non-pressurized (R=-1, thick)	1.00	2.0	1.48-1.51	3.0	6.5
Pressurized 10 (R=0, thin)	1.24-1.25	2.4	0.32-0.35	3.6	7.2
Pressurized 10A (R=0, thin)	1.24-1.26	2.4	0.31-0.32	3.6	7.2

さ 1 mm 以上のものを用いた。②では、負荷様式として両振り、片振り引張、片振り圧縮の 3 種類を比較した。この場合においても、圧縮時に座屈しないように厚さ 1 mm 以上の試験片を用いた。③では、試験片厚さを実際の接合厚さに近くするため 0.3 mm 程度の薄いものを用い、片振り引張にて試験を実施した。表 4.3 に試験片毎の疲労試験条件をまとめた。①、②は変位制御とした。③は変位制御の場合、変位を戻した際に圧縮となり座屈する可能性があるため、荷重制御とした。

4.2.3 破面観察方法

疲労試験後の破面におけるミクロな破壊状態を確認するため、破面観察を行った。破面観察は、FE-SEM (Field Emission-Scanning Electron Microscope) により行い、装置は日本電子製 JSM-7001F を用いた。加速電圧は 15kV とし、二次電子像により撮影した。倍率は最大 50000 倍とした。

4.3 解析方法

4.3.1 マクロなひずみの推定方法

疲労試験時のマクロなひずみは、第 2 章で求めた焼結 Ag のマクロな応力-ひずみ

関係と試験片形状を再現した FEA から変位と試験片中央部のひずみの関係を求め、求めた関係を用いて測定した微小変位をひずみに変換することで推定した。微小変位は、100 cycle 時の値を用いた。FEA モデルを図 4.2 に示す。表 4.2 に示す寸法に従い、チャック部間の試験片形状を FEA モデルで再現した。対称性を考慮し、全体の 1/8 の領域をモデル化した。チャック部は、解析モデルの端部に一様変位の境界条件を設定することでモデル化した。試験片部分を六面体 2 次要素で分割し、試験片長手方向に強制変位を与えて荷重と変位の関係を取得した。ソルバーには、汎用 FEA ソフト Abaqus/Standard version 6.13[1]を用いた。

4.3.2 ミクロなひずみ分布の推定方法

破面観察により得られた破壊状態がどのようなひずみ分布によって生じたものかを確認するため、疲労試験時におけるミクロな多孔質構造のひずみ分布を解析した。解析に用いたミクロな多孔質構造を再現した FEA モデルを図 4.3 に示す。広範囲でひずみ分布を確認するため、第 2 章で用いたモデルよりも解析領域を広くとった。4.3.1 節で求めた疲労試験時のマクロなひずみから求めた変位量を強制変位としてモデルに与えて解析を実施した。対称境界条件をモデルの片側に付与し、反対側を一様変位境界条件として強制変位を x 方向（試験片の負荷方向）に与えた。Ag 部分のミクロな応力-ひずみ関係は、第 2 章で求めた結果を用いた。

Table 4.3 Conditions of fatigue tests: (a) effect of pressure, (b) effect of loading type, (c) effect of heat treatment.

(a)

Condition	Atmosphere	Temperature	Control	Loading type	Stress ratio	Displacement (mm)
Pressurized-10	Air	RT	Displacement	Reversed	1	± 0.05
						± 0.04
						± 0.025
Non-pressurized	Air	RT	Displacement	Reversed	1	± 0.03
						± 0.02
						± 0.005

(b)

Condition	Atmosphere	Temperature	Control	Loading type	Stress ratio	Displacement (mm)
Pressurized-10	Air	RT	Displacement	Reversed	1	± 0.04
				Pulsating-tensile loading	0	0.04
				Pulsating-compression loading	$-\infty$	-0.04

(c)

Condition	Atmosphere	Temperature	Control	Loading type	Stress ratio	Stress (MPa)
Pressurized-10	Air	RT	Load	Pulsating-tensile loading	0	90
						80
						70
Pressurized-10A	Air	RT	Load	Pulsating-tensile loading	0	60
						50
						40

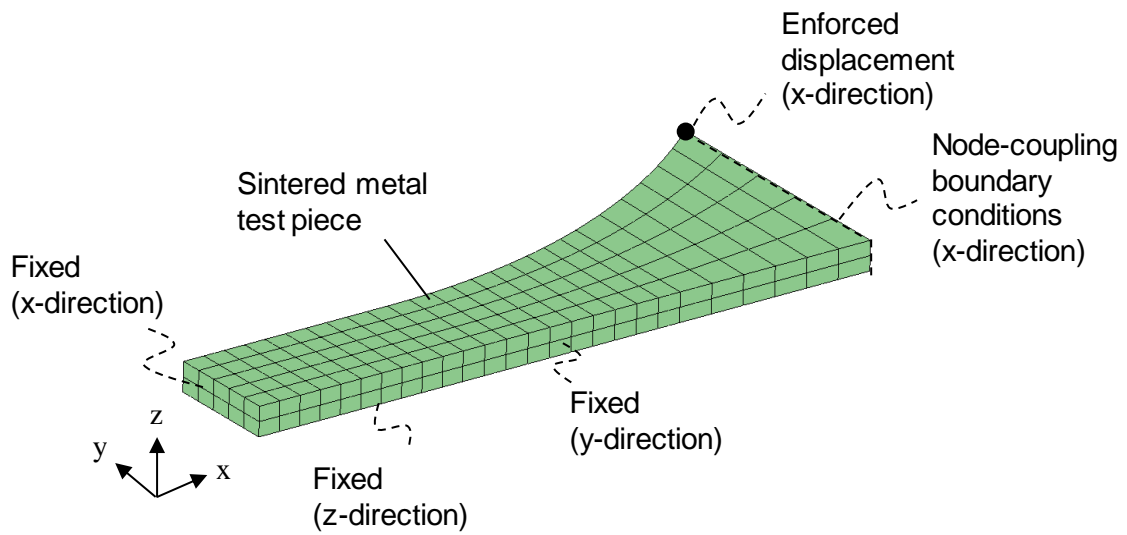


Fig. 4.2 FEA model for tensile test.

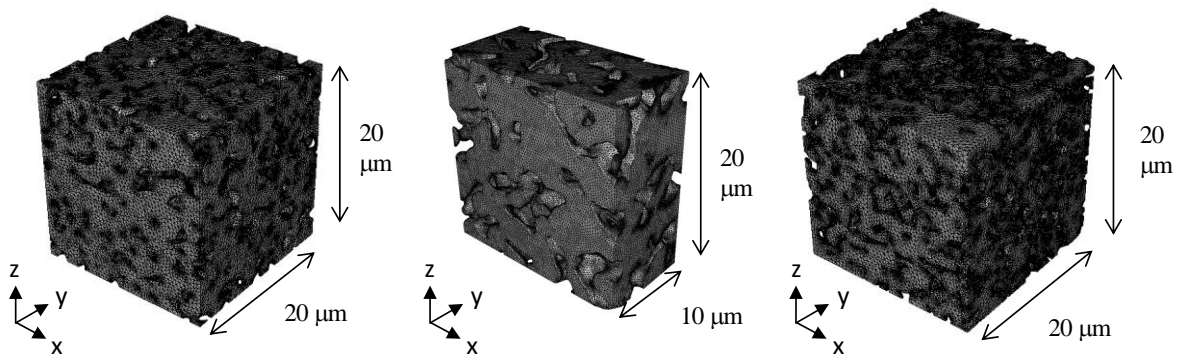


Fig. 4.3 FEA models of microscopic sintered structures: (a) pressurized 10, (b) pressurized 10A and (c) non-pressurized.

4.4 結果と考察

4.4.1 加圧有無の影響

加圧 10 と無加圧の疲労試験によって得られた疲労寿命 N_f と応力範囲および微小変位範囲の関係を図 4.4 に示す。これより、加圧 10 に比べて無加圧の疲労強度は大幅に低下することがわかった。同じ疲労寿命における応力を比較すると、加圧 10 は無加圧の約 4.5 倍となった。無加圧では空孔率が加圧 10 より高いため、疲労強度が低下したと考えられる。ただし、無加圧においても、応力を 10 MPa 程度と低く抑えた場合には、 10^5 サイクル以上の寿命が得られることが確認できた。

4.4.2 負荷様式の影響

本節では、加圧 10 を対象として、疲労試験の負荷様式が焼結 Ag の疲労寿命に与える影響を確認した。疲労試験の負荷様式として、①両振り ($-0.04 \text{ mm} \sim +0.04 \text{ mm}$)、②引張片振り ($0 \sim +0.04 \text{ mm}$)、③圧縮片振り ($0 \sim -0.04 \text{ mm}$) の 3 条件を比較した。図 4.5 に各ケースにおける疲労寿命を比較した結果を示す。両振りが約 1000 サイクル、引張片振りが約 4000 サイクル、圧縮片振りが未破壊となった。圧縮のみの場合と引張のみの場合で大きな差があることから、本焼結 Ag においては、破壊に対して圧縮側の負荷の寄与は小さいことが示唆された。これらの結果を、応力範囲、最大応力で整理した結果を図 4.6 に示す。両振りの結果については、 $\pm 0.05 \text{ mm}$ 、 $\pm 0.025 \text{ mm}$ のケースも併記した。引張と圧縮の成分を含む応力範囲で整理した場合、両振りと引張片振りの間の負荷のレベルと破壊サイクル数の関係には傾向に大きな差がある。一方で、引張応力成分に相当する最大応力で整理した場合、両振りと引張片振りの結果は一系列に並び傾向が一致している。これより、焼結 Ag は圧縮負荷ではなく主に引張負荷で破壊していると考えられる。

従来の接合材であるはんだ材では、一般的に引張と圧縮の成分を含む相当塑性ひずみ範囲を用いて寿命評価が実施される。しかしながら、本研究で取り扱った焼結 Ag において従来のような相当塑性ひずみ範囲などの圧縮成分を含めた指標で評価を行った場合、本来破壊に寄与しない圧縮成分を含めて評価してしまうため、ひずみを過剰に評価してしまう可能性がある。このため、焼結 Ag の疲労寿命評価においては、最大主応力範囲、最大主ひずみ範囲などの引張成分に着目した評価が重要となると考えられる。

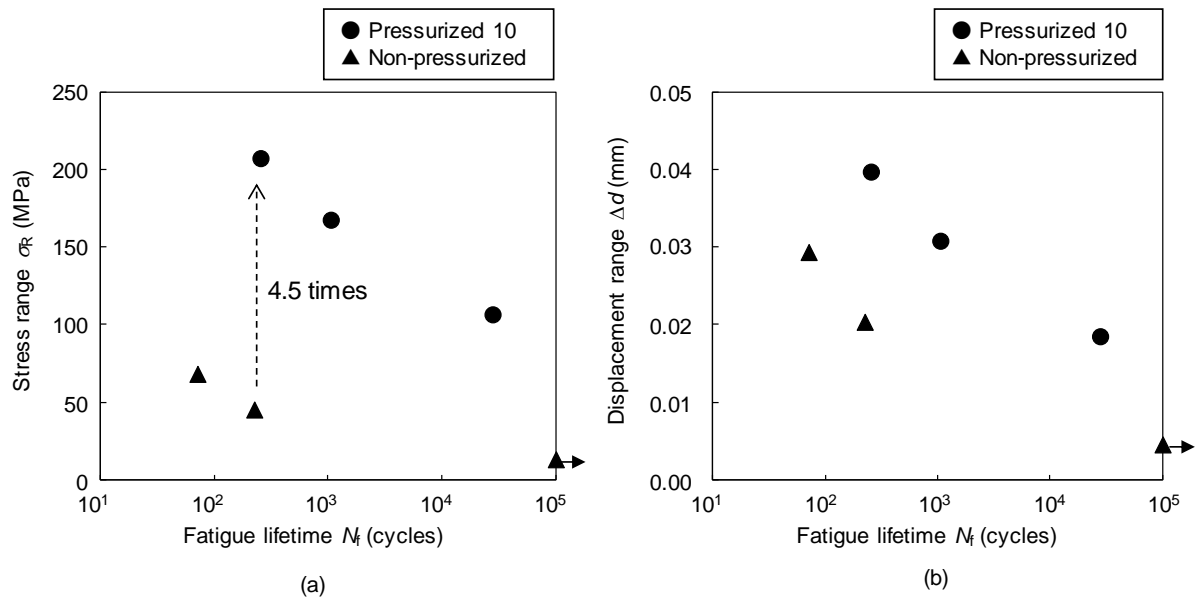


Fig. 4.4 Results of fatigue tests of sintered Ag: (a) fatigue lifetime vs. stress range and (b) fatigue lifetime vs. displacement range.

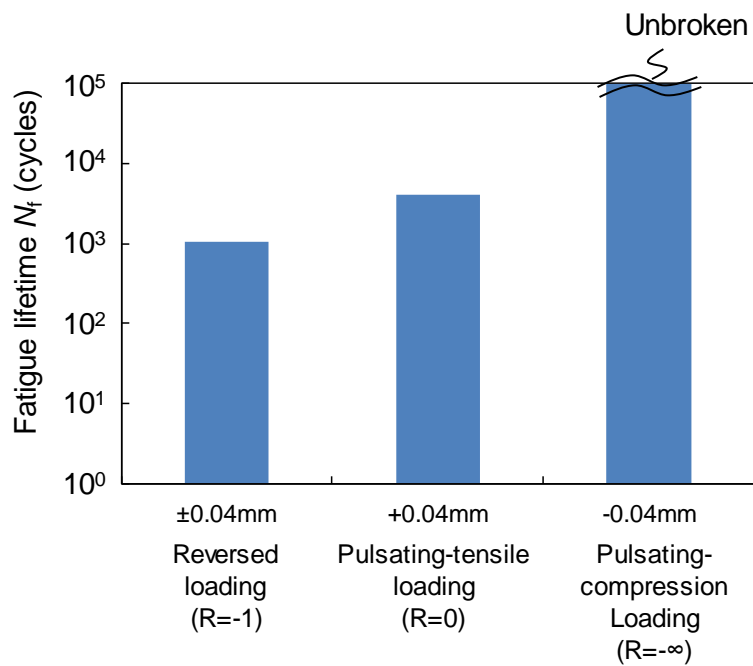


Fig. 4.5 Relation between fatigue lifetime and loading type.

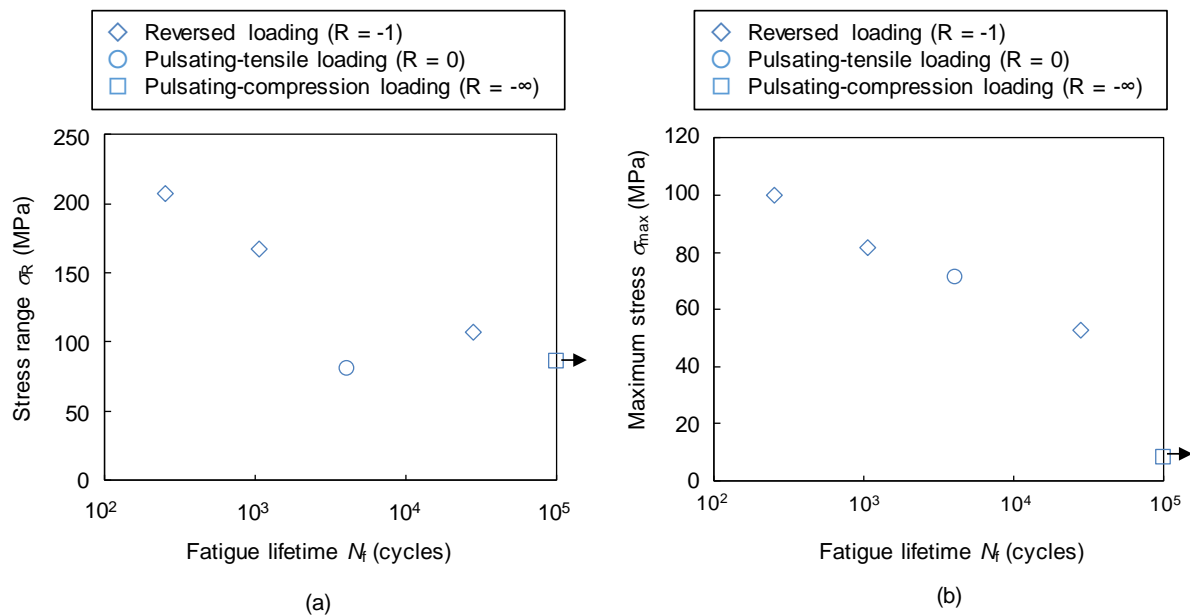


Fig. 4.6 Results of fatigue tests of sintered Ag: (a) fatigue lifetime vs. stress range and (b) fatigue lifetime vs. maximum stress.

4.4.3 試験片厚さおよび熱処理の影響

前節まででは、両振りや片振り圧縮の試験を実施できるように 1 mm 程度の厚い試験片を用いたが、実際の焼結接合層は 0.1 mm 程度であるため、より実際に近い厚さで試験を行うことが好ましい。このため、第 2 章で用いた厚さ 0.3 mm 程度の試験片を用いて疲労試験を行い、厚さ 1 mm の結果と比較した。サンプルは、加圧 10 および加圧 10A にて試験を行った。得られた疲労試験結果を図 4.7 に示す。前節の結果より最大応力（片振りの場合、応力範囲と一致）で整理し、前節で得られた厚さ 1 mm の結果も併記した。これより、厚い試験片に比べて薄い試験片の方が疲労特性が良くなる傾向が見られた。この原因を確認するため、試験片を切り出して断面の緻密状態を観察した。結果を図 4.8 に示す。厚い試験片では、サンプルの厚さ方向の片側に緻密度の低い領域やマクロなボイドが観察された。一方で薄い試験片では、均一な緻密状態となっていることが確認できた。この原因としては、厚い試験片では乾燥や予備焼成時に有機溶剤が抜けにくくなり、片側にボイドが残ったことなどが考えられる。このように、厚い試験片では緻密状態にムラが生じ、空孔率の高い領域で早期に破壊が発生したために、薄い試験片よりも疲労特性が悪化したと考えられる。

また、加圧 10 と加圧 10A を比較した場合、加圧 10A の方が疲労強度が低くなる傾向となった。この原因としては、加圧 10A の空孔率が加圧 10 より高いことや、熱処理によって Ag 部分が軟化していることが考えられる。

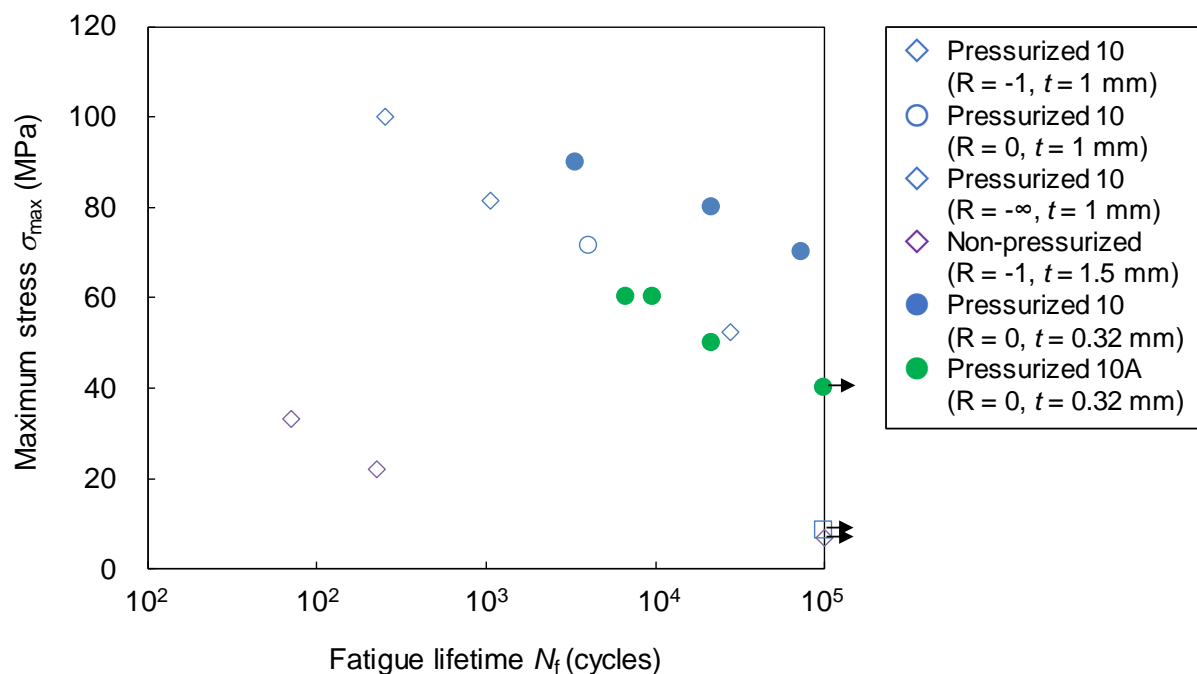


Fig. 4.7 Effects of specimen thickness on relationships between maximum stress and fatigue lifetime.

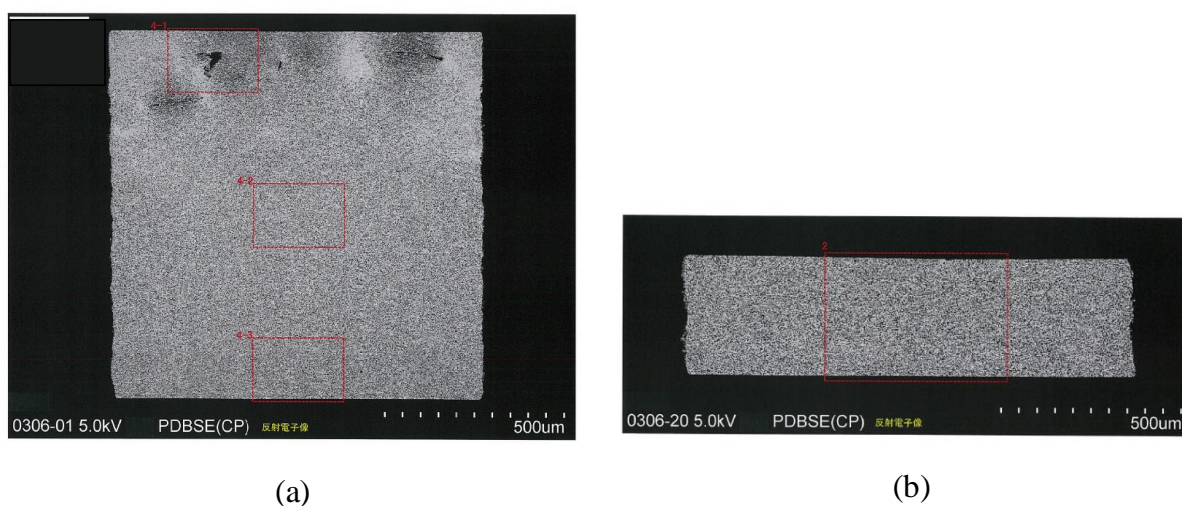


Fig. 4.8 Cross-sectional images of sintered Ag specimens: (a) thickness 1.0 mm (Pressurized 10), (b) thickness 0.32 mm, (Pressurized 10A).

4.4.4 破面観察結果

疲労試験において焼結 Ag がどのように破壊したかを明らかにするため、疲労試験後サンプルの破面観察を実施した。加圧 10，無加圧，加圧 10A の結果をそれぞれ図 4.9～4.11 に示す。これらの結果より、どのケースにおいても、粒子の接合部（ネック部）や空孔周辺部において破壊が発生していることがわかる。図 4.10(a)に代表されるように、結晶粒界部において脆性破壊している様子や、図 4.9(b)に代表されるように、ネックやボイドにおいて塑性変形が集中し延性破壊している様子が確認できた。ネック部の面積が微小であるため判断が難しいが、疲労によるストライエーションは明確には確認できなかった。

4.4.5 ミクロなひずみ分布の解析結果

疲労試験時における焼結 Ag のミクロな Ag 部分でのひずみ分布を明らかにするため、多孔質構造を模擬したマイクロモデルを用いてひずみ分布を計算した。マクロなひずみは 0.23% に固定し、加圧 10，加圧 10A，無加圧のひずみ分布を比較した。図 4.12

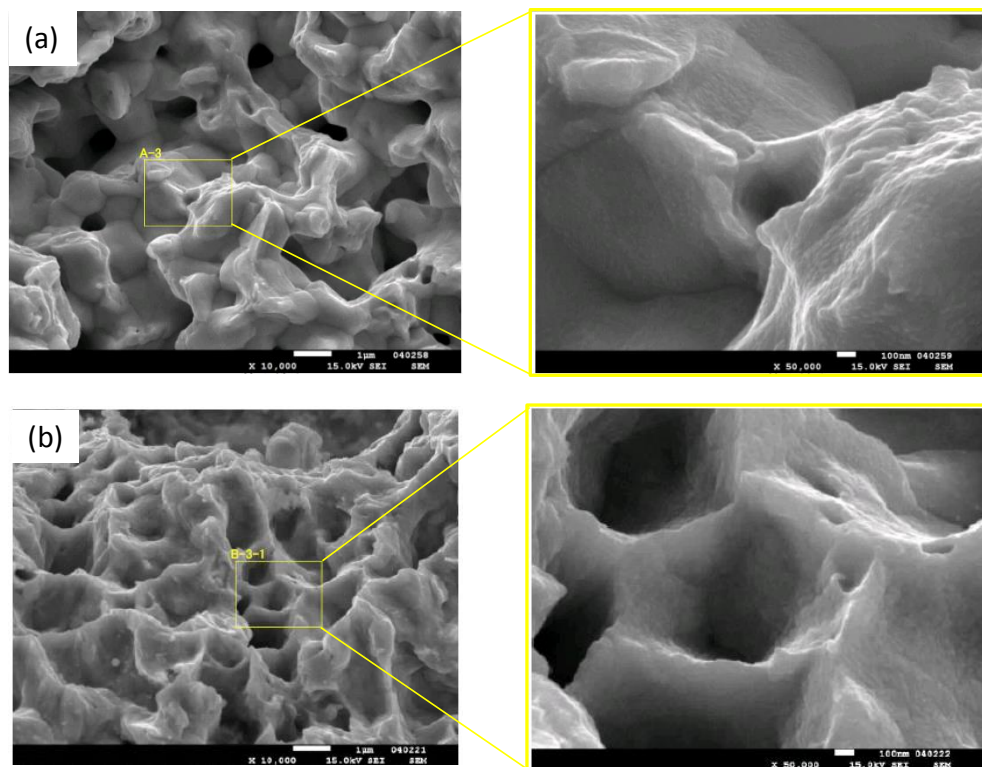


Fig. 4.9 SEM images of sintered Ag (Pressurized 10, $t = 1.0$ mm) on fracture surfaces after fatigue tests.

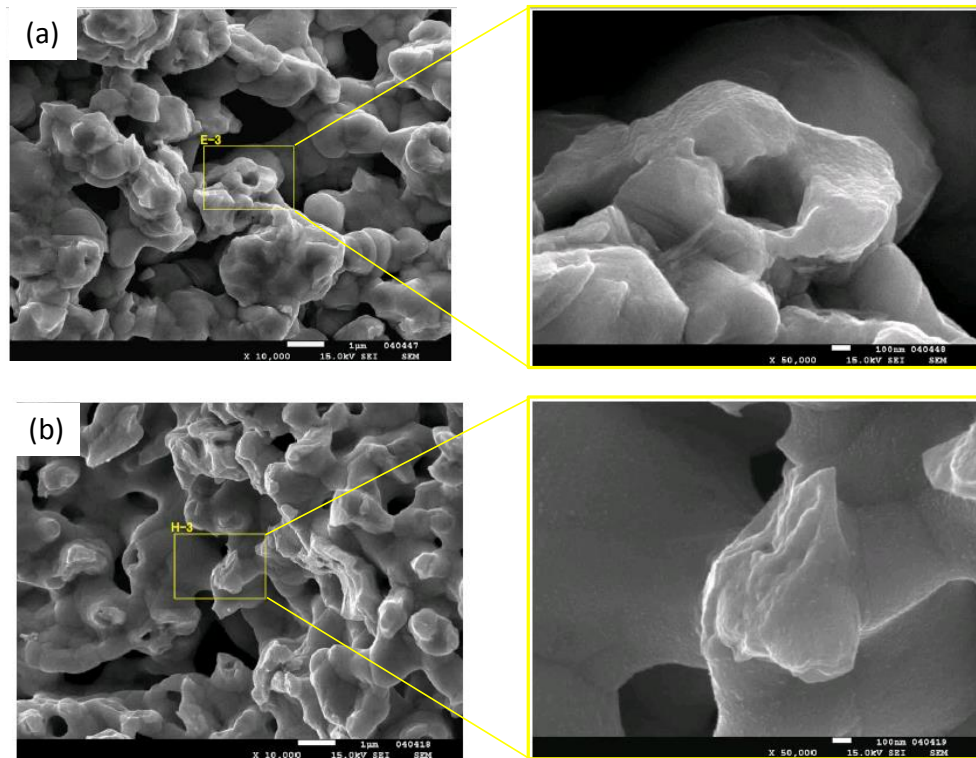


Fig. 4.10 SEM images of sintered Ag (Non-pressurized, $t = 1.0$ mm) on fracture surfaces after fatigue tests.

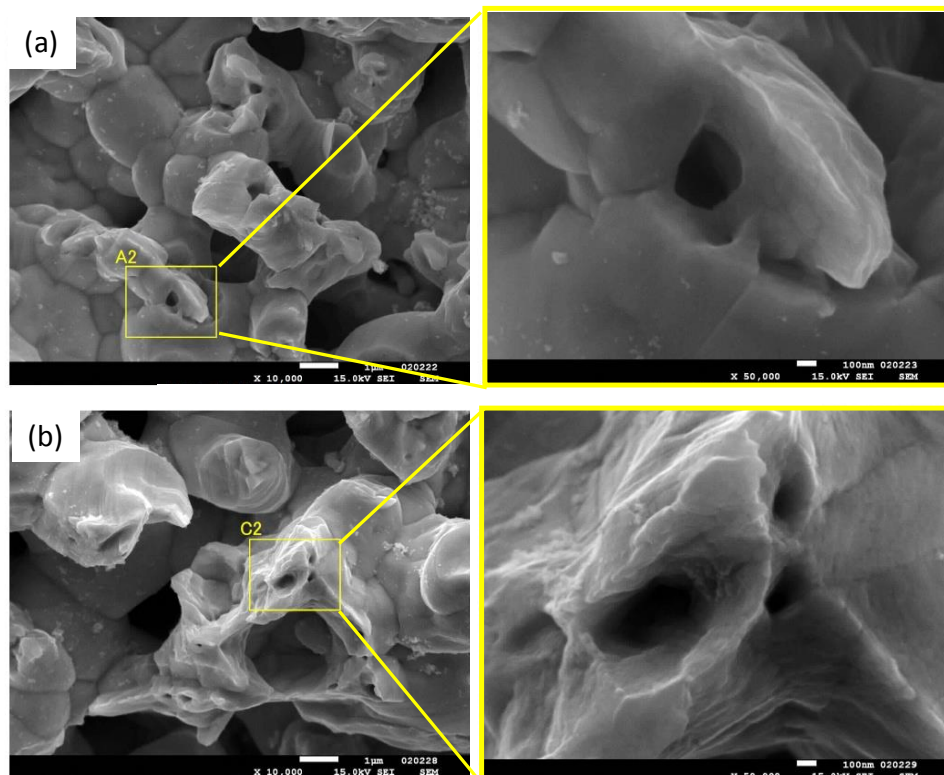


Fig. 4.11 SEM images of sintered Ag (Pressurized 10A, $t = 1.0$ mm) on fracture surfaces after fatigue tests.

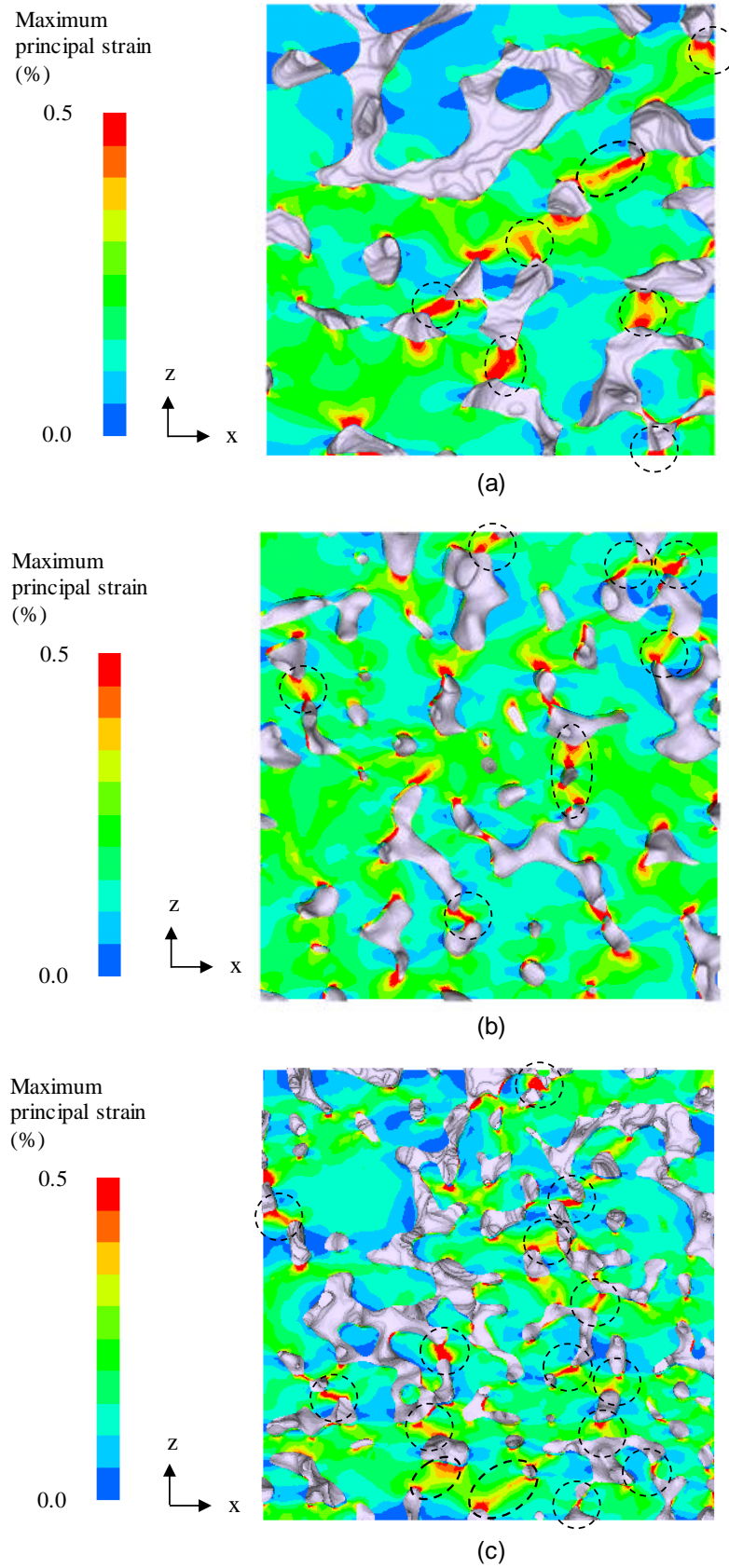


Fig. 4.12 Calculated micro-strain distributions: (a) pressurized 10, (b) pressurized 10A and (c) non-pressurized (Macro-strain = 0.23%).

に最大主ひずみ分布の計算結果を示す。4.4.2 節の結果より，引張負荷により破壊していると予想されることから，評価指標として最大主ひずみを用いた。この結果より，ネック部やボイド周辺部においてひずみが集中している様子が確認できた。これは破面観察における破壊様相と対応する結果である。これらのことより，ミクロなネック部およびボイド周辺部にひずみが集中し，脆性および延性的な破壊を繰り返しながら破壊が進行していったと推定できる。また，加圧 10 と無加圧や加圧 10A を比較すると，無加圧や加圧 10A では加圧 10 に比べてひずみ集中の箇所が多く，ひずみ集中箇所が破壊した場合に，直ぐに縦方向のき裂に繋がることわかる。このような空孔率増加に伴うひずみ集中箇所の増加が，加圧 10A や無加圧の寿命を低下させた一因であると考えられる。

4.5 結言

加圧圧力，熱処理条件の異なる焼結 Ag 接合材料を対象として疲労試験を実施し，加圧依存性，負荷様式依存性を調査した。また，ミクロな多孔質構造を再現した FEA によって疲労試験時のひずみ分布を計算し，破面観察結果と比較した。本章の結果は以下のようにまとめられる。

（１）10 MPa で加圧したものと無加圧のもので疲労強度を比較した結果，10 MPa で加圧したものの方が長寿命となった。

（２）負荷様式と疲労寿命の関係を評価した結果，両振りが約 1000 サイクル，引張片振りが約 4000 サイクル，圧縮片振りが未破壊となり，焼結 Ag は圧縮負荷ではなく主に引張負荷で破壊していることが明らかとなった。

（３）試験片厚さが厚い場合，試験片内部に緻密状態のムラが生じ，薄く作製したものよりも寿命が低下した。

（４）熱処理したものは，熱処理していないものよりも寿命が低下した。

（５）破面観察の結果，ミクロなネック部やボイド周辺部で破壊が生じており，粒界における脆性的な破壊や延性的な破壊が見られた。ネック部の面積が微小であるため，疲労破壊に起因するストライエーションは明確には確認できなかった。

（６）ミクロな多孔質構造を模擬した FEA によって，ひずみ分布はネックやボイドの周辺に集中していることを確認した。10 MPa で加圧したもののほうが，無加圧や熱

処理したものに比べてひずみ集中の箇所が少なく，ひずみのレベルも低くなった。

4.6 参考文献

- [1] Simpleware Ltd. <http://www.simpleware.com/>.
- [2] Dassault Systemes Corp.: [http://www.3ds.com /](http://www.3ds.com/).
- [3] W. Ramberg and W. R. Osgood, “Description of Stress-Strain Curves by Three Parameters”, National Advisory Committee on Aero-nautics, Technical Note, 902, 1943.
- [4] M. Dao, N. Chollacoop, K. J. Van Vliet, T. A. Venkatesh, S. Suresh: “Computational modeling of the forward and reverse problems in instrumented sharp indentation”: *Acta Materialia*, Vol. 49, Issue 19, pp. 3899–3918, 2001.
- [5] L. Min, C. Wei-min, L. Nai-gang, W. Ling-Dong: “A numerical study of indentation using indenters of different geometry”, *Journal of Materials Research*, Vol. 19, Issue 1, pp. 73-78, 2004.

第5章 焼結 Cu の疲労特性

5.1 緒言

第4章ですでに述べたように、パワーモジュールの接合材には、稼働時の温度変化と周辺材料の熱膨張係数差によって熱応力が発生し、接合材の疲労破壊を招く恐れがあるから、接合材の疲労特性を把握することは非常に重要な課題となる。Ag よりも低コストで信頼性が高いことが期待されている Cu 粒子を用いた焼結 Cu 接合技術は、高温パワーモジュール向けの接合技術として近年注目されているが[1-6]、その疲労特性に関する報告は見当たらない。

そこで本章では、サブミクロン酸化 Cu 粒子を用いた焼結 Cu 接合材を対象に疲労試験を実施して、加圧依存性を評価し、焼結 Ag と比較した。また、多孔質構造を再現したミクロな解析モデルを用いて疲労試験時の焼結材内部のミクロなひずみ分布を解析し、破面観察結果と比較することで、破壊がどのように生じているかを考察した。

5.2 実験方法

5.2.1 試験片の準備

試験に用いた焼結 Cu の試験片は、次の手順で準備した。まず、酸化 Cu 粒子（平均粒径 200 nm）と有機溶剤からなる酸化 Cu ペーストを SUS プレート上にメタルマスクとスキージを用いて短冊型に塗布した。次に、SUS プレートを 80℃で約 20 分乾燥させた。つづいて、350℃で 15 分間、水素雰囲気中で加圧焼成を行った。加圧は、加圧治具により所定の加圧力になるまでボルト締めすることで実施した。加圧条件は、約 4 MPa で加圧したもの（以下、加圧 4 と記す）と約 13 MPa で加圧したもの（以下、加圧 13 と記す）の 2 種類とした。焼成後に SUS プレートから取り外し、周囲のバリを研磨などで取り除くことで短冊状の試験片を得た。作製した薄板を次に示す手順で加工してダンベル試験片を作成した。まず、試験片の錆びを抑制する目的で試験片表面に防錆剤を塗布した。その後、ワイヤ放電加工によって図 5.1 の形状に加工し、加工断面の酸化除去のため、水素雰囲気中で 260℃、5 分、無加圧で還元処理を実施した。

試験片の寸法値を表 5.1 に示す。 w_p は平行部の幅、 L_p は平行部の長さ、 t は平行部の厚さ、 R はネックの曲率半径である。 t と w_p はマイクロメータによって測定し、測定値から断面積 A を算出した。

5.2.2 疲労試験方法

焼結 Cu の疲労試験は、鷺宮製作所製の微小荷重疲労試験機 (LMH207-10) を用いて、大気中常温にて実施した。試験速度は 5 Hz とした。試験片が完全に分離破断するまでの繰り返し数を疲労寿命と定義した。試験は 10^5 回で打ち切りとした。治具間の微小変位を微小変位センサ (静電容量式) により測定した。

焼結 Cu では、焼結 Ag のように厚い試験片を作製すると試験片の割れが生じてしまい、作製困難であった。これは、酸化 Cu が還元反応するため、体積収縮が焼結 Ag よりも大きいことが原因であると考えられる。このため、薄い試験片しか作製できず、両振りなどの圧縮を含む試験は困難であった。しかしながら、前章の焼結 Ag の結果

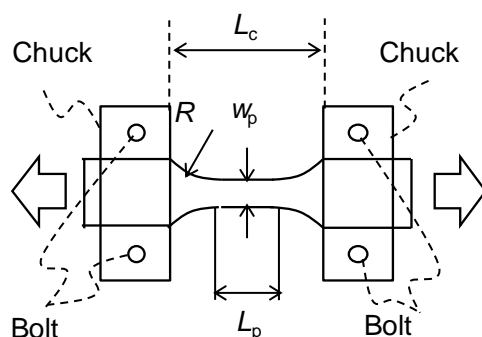


Fig. 5.1 Shape of specimen

Table 5.1 Dimensions of sintered Cu specimens.

Conditions	No.	L_p (mm)	t (mm)	w_p (mm)	A (mm ²)	L_c (mm)	R (mm)
Pressurized 4	1	1.5	0.21	0.86	0.18	5.31	3.6
	2		0.20	0.85	0.17	5.31	
	3		0.21	0.86	0.18	5.31	
	4		0.21	0.85	0.18	5.38	
	5		0.25	0.85	0.21	5.32	
Pressurized 13	1		0.18	0.85	0.15	5.48	
	2		0.18	0.85	0.15	5.47	
	3		0.16	0.86	0.14	5.48	

より、圧縮負荷は疲労破壊に寄与しておらず、引張片振りにより評価可能であることが示唆されている。これより本章では、引張片振りにて疲労試験を実施して、前章の焼結 Ag の結果と比較することとした。疲労試験条件を表 5.2 に示す。変位制御の場合、変位を戻した際に圧縮となり座屈する可能性があるため、荷重制御により実施した。

5.2.3 破面観察方法

疲労試験後の破面におけるミクロな破壊状態を確認するため、破面観察を行った。破面観察は FE-SEM により行い、装置は日本電子製 JSM-7001F を用いた。加速電圧は 15kV とし、二次電子像により撮影した。倍率は最大 50000 倍とした。

5.3 解析方法

5.3.1 マクロなひずみの推定方法

疲労試験時のマクロなひずみは、第 3 章で求めたマクロな応力-ひずみ関係と試験片形状を再現した FEA から変位と試験片中央部のひずみの関係を求め、求めた関係を用いて測定した微小変位をひずみに変換することで推定した。微小変位は、100cycle 時の値を用いた。FEA モデルを図 5.2 に示す。表 5.1 に示す寸法に従い、チャック部間の試験片形状を FEA モデルで再現した。対称性を考慮し、全体の 1/8 の領域をモデル化した。チャック部は、解析モデルの端部に一様変位の境界条件を設定することでモデル化した。試験片部分を六面体 2 次要素で分割し、試験片長手方向に強制変位を与えて荷重と変位の関係を取得した。ソルバーには、汎用 FEA ソフト Abaqus/Standard version 6.13[7]を用いた。

5.3.2 ミクロなひずみ分布の推定方法

破面観察により得られた破壊状態がどのようなひずみ分布によって生じたものかを確認するため、疲労試験時におけるミクロな多孔質構造のひずみ分布を解析した。解析に用いたミクロな多孔質構造を再現した FEA モデルを図 5.3 に示す。5.3.1 節で求めた疲労試験時のマクロなひずみから求めた変位量を強制変位としてモデルの境界に与えて解析を実施した。対称境界条件をモデルの片側に付与し、反対側を一様変位境界条件として強制変位を x 方向（試験片の負荷方向）に与えた。Cu 緻密部分のミクロな応力-ひずみ関係には、第 3 章で求めた材料定数を用いた。

Table 5.2. Dimensions of sintered Cu specimens

Condition	No.	Atmosphere	Temperature	Control	Loading type	Stress ratio	Stress (MPa)
Pressurized 4	1	Air	RT	Load	Pulsating -tensile loading	0	90
	2						100
	3						110
	4						120
	5						130
Pressurized 13	1	Air	RT	Load	Pulsating -tensile loading	0	160
	2						200
	3						220

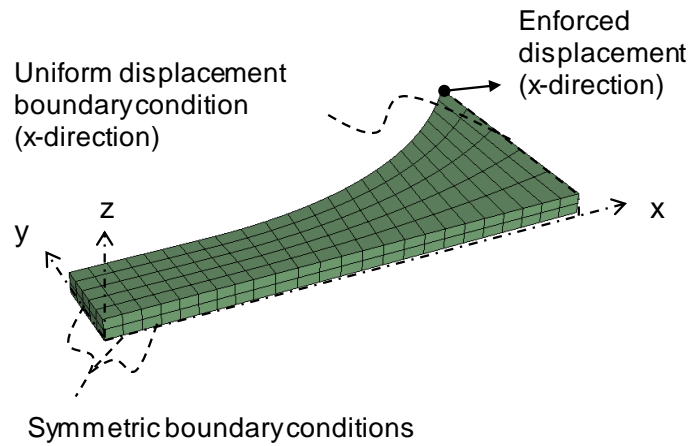


Fig.5.2 FEA model of sintered Cu specimen.

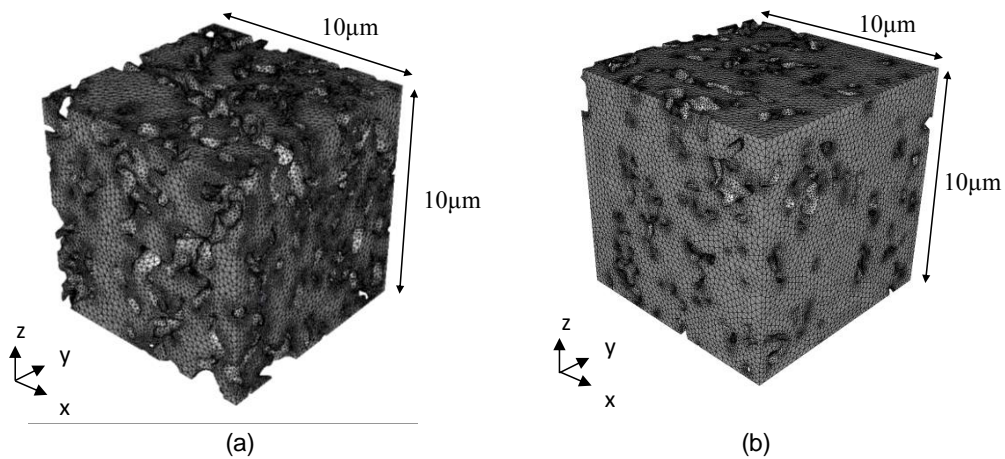


Fig. 5.3 FEA models of microscopic sintered structures: (a) pressurized 4 and (b) pressurized 13.

5.4 結果と考察

5.4.1 疲労試験結果（応力範囲）

加圧 4 と加圧 13 の疲労試験によって得られた疲労寿命 N_f と応力範囲 σ_R の関係を図 5.4 に示す。焼結 Ag の加圧 10, 加圧 10A の結果も併記した。疲労強度の序列は, 焼結 Cu (加圧 13, $p=10\%$) が最も高く, 次に焼結 Cu (加圧 4, $p=25-36\%$), 次に焼結 Ag (加圧 10, $p=20\%$), 焼結 Ag (加圧 10A, $p=24\%$) が最も低い結果となった。焼結 Cu (加圧 4) の方が焼結 Ag (加圧 10A) よりも空孔率が高いことから, 応力範囲で整理した場合には, 焼結 Cu の方が焼結 Ag よりも疲労強度が高いと言える。また焼結 Cu においては, 加圧圧力が高い方が疲労強度が高くなった。第 2, 3 章の結果より, 焼結 Ag や焼結 Cu のミクロな緻密部の機械的特性が加圧により大きく変化しないと推察されたことから, 焼結 Cu の疲労強度が加圧により増加した主な要因は, 加圧による緻密化であると考えられる。

5.4.2 破面観察結果

疲労試験において焼結金属がどのように破壊したかを明らかにするため, 疲労試験後サンプルの破面観察を実施した。図 5.5, 5.6 に観察結果を示す。加圧 4, 加圧 13 の結果をそれぞれ示した。どちらの試験片においても 10^4 サイクル以上の結果として試験片番号 1 番における観察結果を示している。これらの結果より, 図 5.5(b), 5.6(b) に示されるような粒子の接合部（ネック部）における破壊や, 図 5.5(a), 5.6(b) に示されるような空孔周辺部における破壊が発生していることがわかる。焼結 Ag と同様にネック部の面積が微小であるため判断が難しいが, 疲労によるストライエーションは明確には確認できなかった。これらの破壊が徐々に進行し, 最終的に試験片の破断に至ったと考えられる。

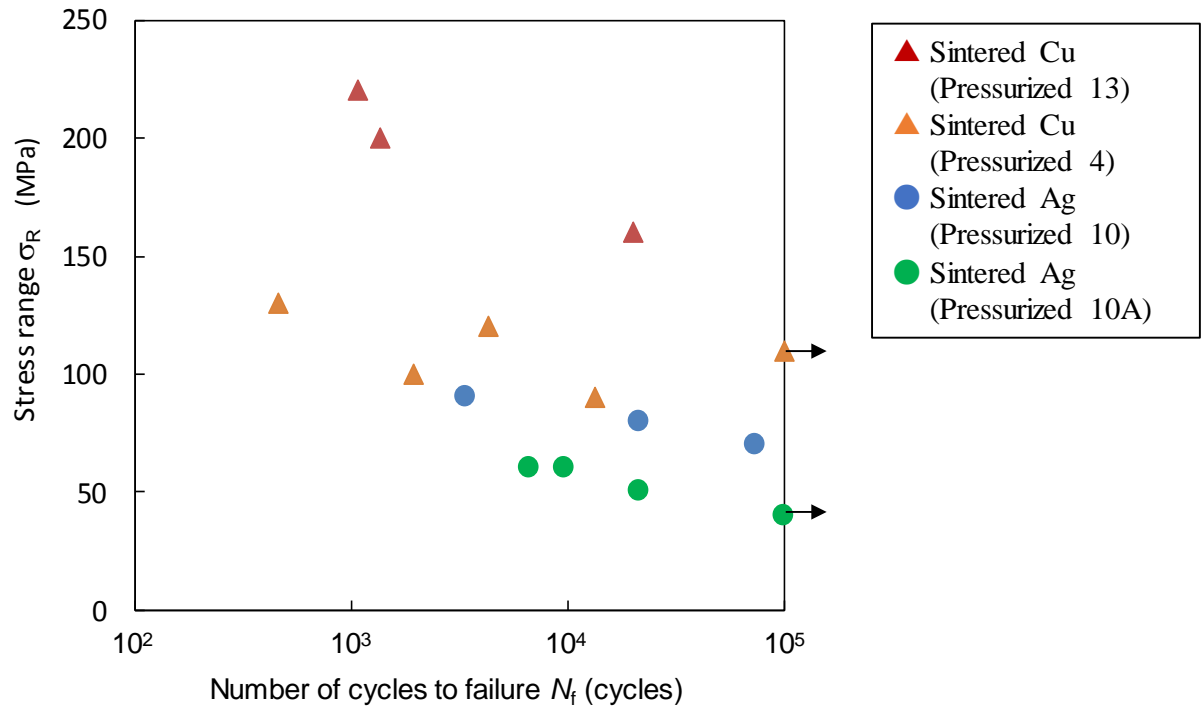


Fig. 5.4. Relations between nominal stress range σ_R and number of cycles to failure N_f obtained from fatigue tests.

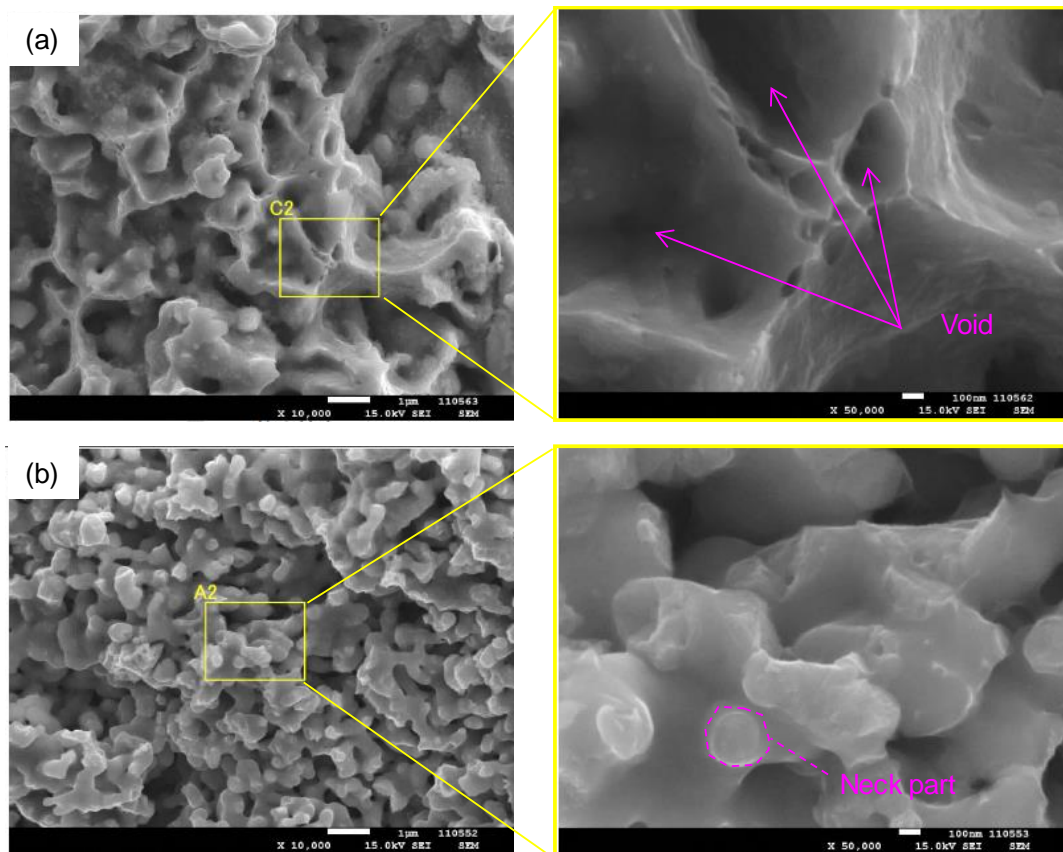


Fig. 5.5 SEM images of sintered Cu (Pressurized 4) on fracture surfaces after fatigue tests.

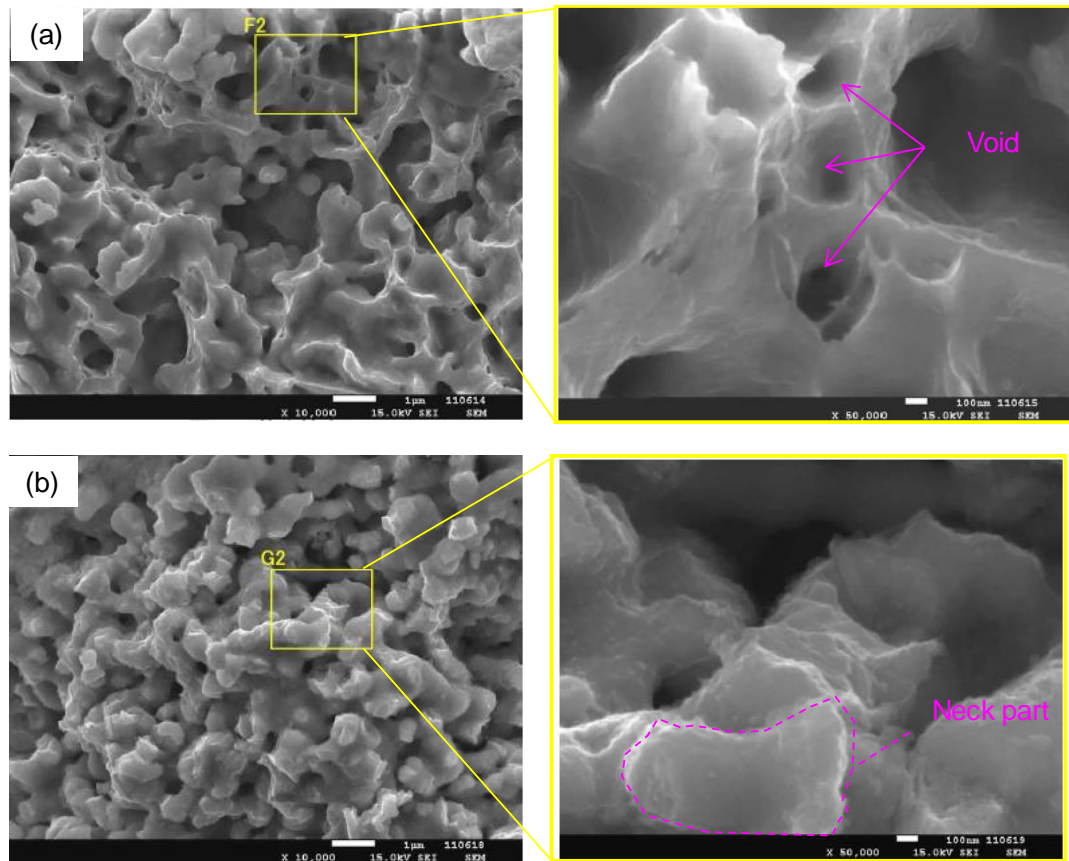


Fig. 5.6 SEM images of sintered Cu (Pressurized 13) on fracture surfaces after fatigue tests.

5.4.1 疲労試験結果（ひずみ範囲）

つづいて、図 5.4 の結果を全ひずみ範囲 $\Delta\epsilon$ と N_f の関係に変換して評価する。このため、試験片を模擬した FEA 解析により計算した変位とひずみの関係（図 5.7）に基づき、測定した微小変位をひずみに変換した。得られた結果を図 5.8 に示す。第 4 章で得られた焼結 Ag の結果も併記した。疲労強度の序列としては、焼結 Cu（加圧 13, $p = 10\%$ ）が最も高く、次に焼結 Ag（加圧 10, $p = 20\%$ ），次に焼結 Cu（加圧 4, $p = 25 \sim 36\%$ ），焼結 Ag（加圧 10A, $p = 24\%$ ）が最も低い結果となった。応力範囲で比較した場合に比べて焼結 Cu と焼結 Ag の差が小さくなり、焼結 Cu（加圧 4）と焼結 Ag（加圧 10）の関係が逆転している。この原因としては、焼結 Cu の方が焼結 Ag よりもヤング率が高いことと、空孔率が焼結 Cu（加圧 4, $p = 25 \sim 36\%$ ）よりも焼結 Ag（加圧 10, $p = 20\%$ ）の方が低いためであると考えられる。一方で、同程度の空孔率である焼結 Ag（加圧 10A, $p = 24\%$ ）と焼結 Cu（加圧 4, $p = 25 \sim 36\%$ ）を比較する

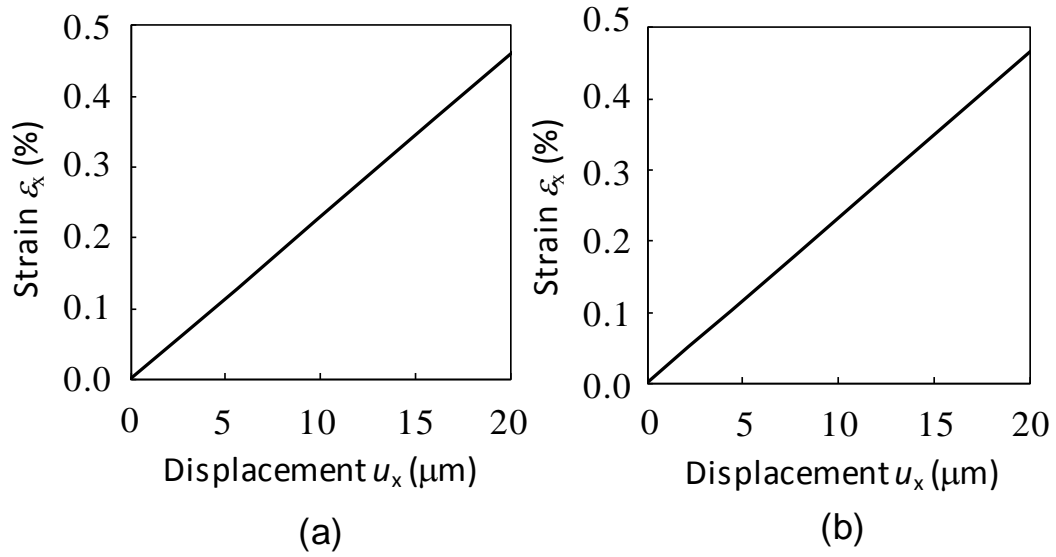


Fig. 5.7 Relations between displacement and strain obtained from FEA: (a) pressurized 4 and (b) pressurized 13.

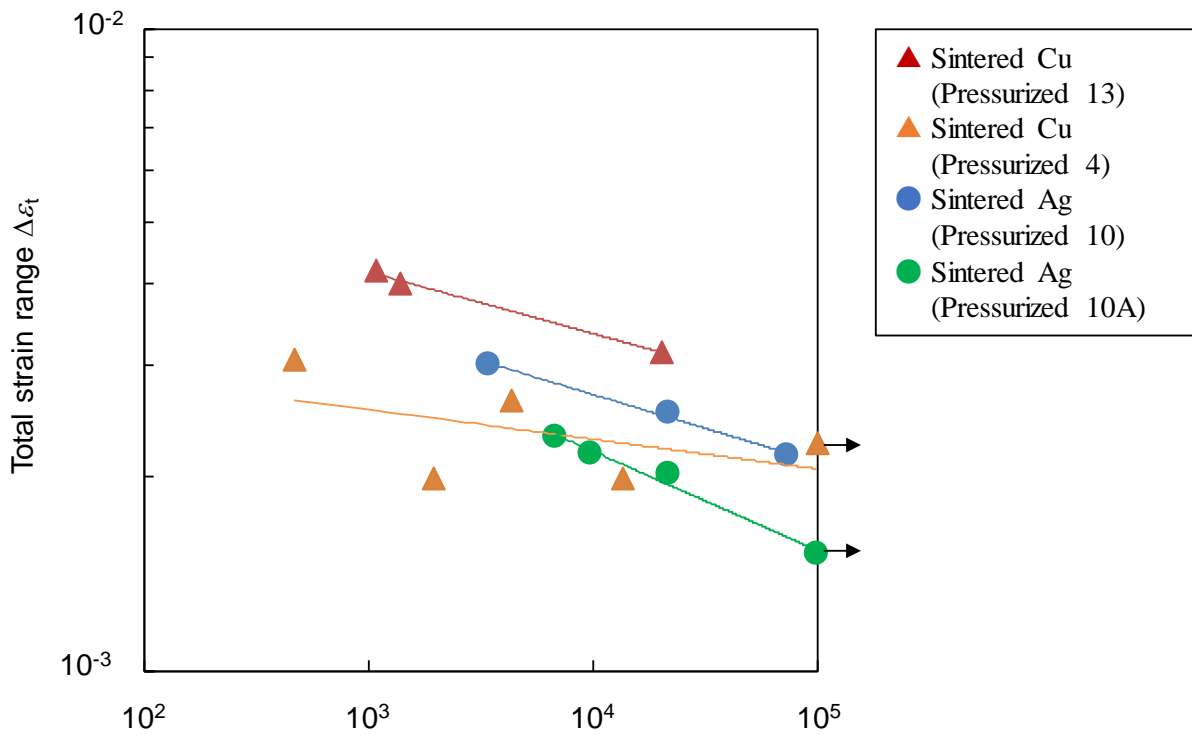


Fig. 5.8 Relations between total strain range and number of cycles to failure N_f obtained from fatigue tests.

と、焼結 Cu（加圧 4）の方が傾きが小さく、低ひずみ領域においては疲労寿命が高い傾向となった。これらの結果より、焼結 Cu の疲労寿命は、ひずみ範囲で整理した場合には焼結 Ag と同等かそれ以上であると考えられる。

5.4.2 ミクロなひずみ分布の解析結果

疲労試験時における焼結 Cu のミクロな Cu 部分でのひずみ分布を明らかにするため、多孔質構造を模擬したマイクロモデルを用いてひずみ分布を計算した。マクロなひずみは 0.23% に固定し、加圧 13、加圧 4 のひずみ分布を比較した。最大主ひずみの計算結果を図 5.9 に示す。5.4.2 節の結果より、引張負荷により破壊していると予想されることから、評価指標として最大主ひずみを用いた。この結果より、ネック部やボイド周辺部においてひずみが集中している様子が確認できた。これは破面観察における破壊様相と対応する結果である。これらのことより、ミクロなネック部およびボイド周辺部にひずみが集中し、破壊が発生・進行していったと推定できる。また、加圧 4 ではひずみの集中箇所が縦方向に並んでおり、ネック部が破壊した際に縦方向のき裂につながりやすいのに対し、加圧 13 ではひずみ集中箇所は一部であり、ネック部が破壊した後も、その他の太いパスが持ちこたえることが可能であると考えられる。これにより、加圧 13 の方が加圧 4 よりも長寿命となったと考えられる。

5.5 結言

加圧圧力の異なる焼結 Cu 接合材料を対象として疲労試験を実施し、加圧依存性を調査するとともに、焼結 Ag と疲労特性を比較した。また、ミクロな多孔質構造を再現した FEA によって疲労試験時のひずみ分布を計算し、破面観察結果と比較した。本章の結果は以下のようにまとめられる。

- （１）4 MPa で加圧したものと 13 MPa で加圧したものを比較した場合、13 MPa で加圧したもののの方が長寿命となった。
- （２）応力範囲で整理した場合、焼結 Cu の疲労強度は焼結 Ag よりも高くなった。
- （３）破面観察の結果、ミクロなネック部やボイド周辺部で破壊が生じており、粒界における脆性的な破壊や延性的な破壊が見られた。ネック部の面積が微小であるため、疲労破壊に起因するストライエーションは明確には確認できなかった。
- （４）ひずみ範囲で整理した結果、焼結 Cu の疲労強度は焼結 Ag と同等以上と判断

された。

(5) ミクロなひずみ分布を比較した結果、加圧 13 の方が加圧 4 に比べてひずみ集中の箇所が少なく、その度合も小さくなった。

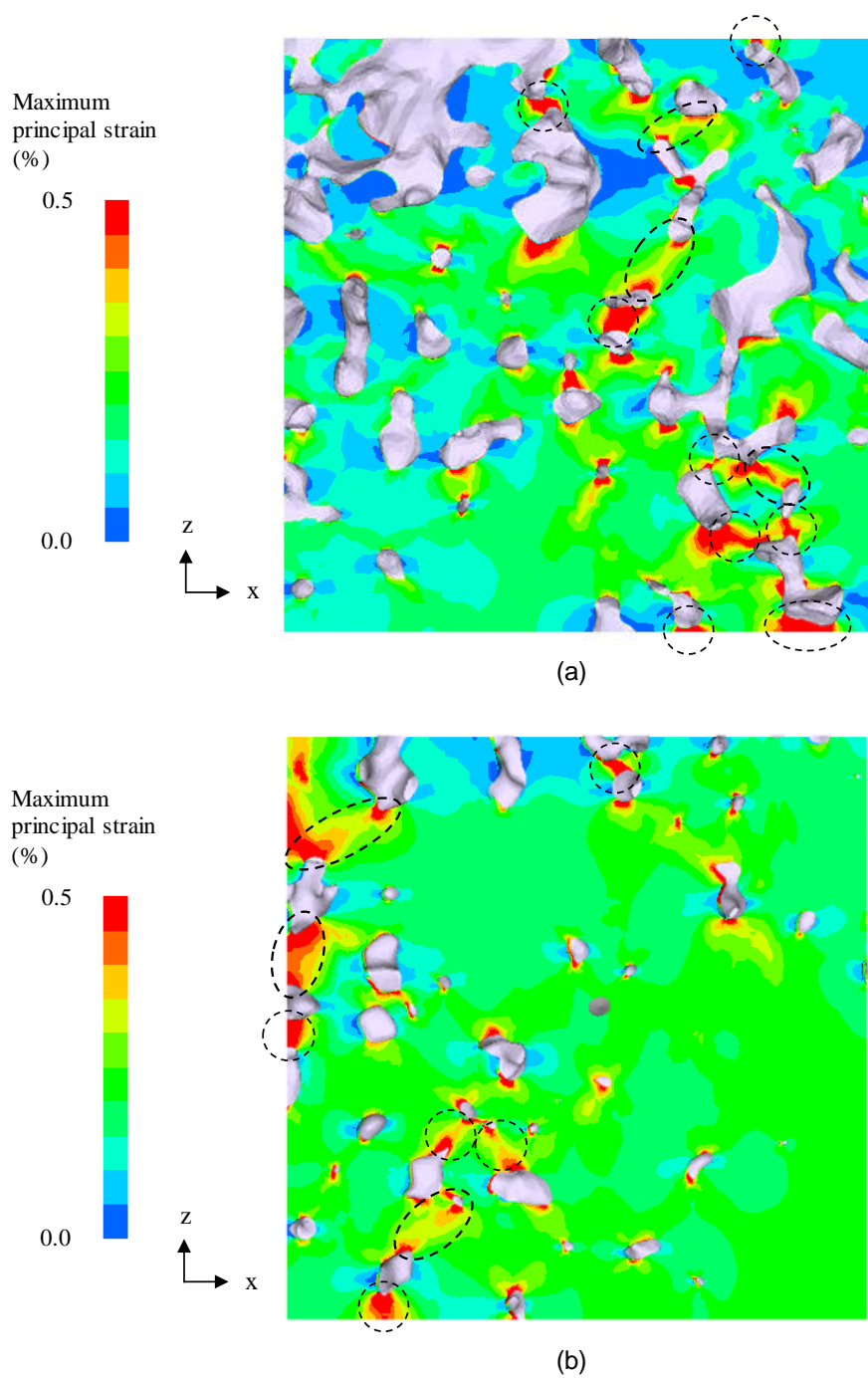


Fig. 5.9 Maximum principal strain distributions: (a) pressurized 4 and (b) pressurized 13 (Macro-strain = 0.23%).

5.6 参考文献

- [1] T. Morita, Y. Yasuda: "New Bond Technique Using Cu Oxide Materials", Materials Transactions, Vol. 56, No. 6, pp. 878-882, 2015.
- [2] A. Konno, T. Miyazaki, Y. Yasuda, O. Ikeda, H. Nakano, T. Morita, H. Hozouji, M. Mori: "Highly Reliable and Lead-Free High Power IGBT Modules Using Novel Cu Sintering Die Attachment", Power Conversion and Intelligent Motion (PCIM) Europe, pp. 78-83, 2016.
- [3] 北村晃良, 川名泰仁, 小山優, 成清善孝, 福本邦宏: "SiC パワーデバイス向け Cu ナノシンター接合材の開発とその評価", 第 23 回エレクトロニクスにおけるマイクロ接合・実装技術シンポジウム, 2017.
- [4] 長谷川和基, 粕谷雅人, 金子俊輔, 梶村優太, 山田靖, 長田裕仁, 佐野義之: "無加圧窒素雰囲気による Cu ナノ粒子接合の特性評価"第 27 回マイクロエレクトロニクスシンポジウム 秋季大会, 2017.
- [5] H. Nakako, D. Ishikawa, C. Sugama, Y. Kawana, M. Negishi, Y. Ejiri, "Sintering Cu Die-Bonding Paste Curable Under Pressureless Conditions", Power Conversion and Intelligent Motion Europe, 2017.
- [6] T. Furukawa, M. Shiraishi, Y. Yasuda, A. Konno, M. Mori, S. Watanabe, T. Arai, M. Nakamura, D. Kawase, "High power density side-gate HiGT modules with sintered Cu having superior high-temperature reliability to sintered Ag", 2017 29th International Symposium on Power Semiconductor Devices and IC's, 2017.
- [7] Dassault Systemes Corp.: <http://www.3ds.com/>.

第6章 パワーモジュールの信頼性評価

6.1 緒言

前章までに、焼結 Ag と焼結 Cu の機械的特性と疲労特性について実験的・解析的に調査を行い、有用な知見を得ることに成功した。しかし、実際のパワーモジュールの設計や破壊メカニズムの解明のためには、モジュール全体のマクロなひずみ分布の把握と、実際に破壊の生じるミクロな金属部におけるひずみ分布を明らかにする必要がある。

そこで本章では、焼結 Ag と焼結 Cu で接合したパワーモジュールを対象に、温度サイクル試験結果と、温度サイクル試験時に焼結接合層に生じるマクロおよびミクロなひずみ分布の解析結果を比較することで、材質による信頼性の差や破壊メカニズムについて検討した。

本章で提案する焼結接合層のマクロおよびミクロなひずみ分布を計算する手順を図 6.1 に示す。まず、空孔の寄与を含むマクロな応力-ひずみ関係を各種試験によって推定する。次に、空孔の寄与を除くミクロな金属部分の応力-ひずみ関係を、多孔質構造を模擬したミクロな FEA モデルと推定したマクロな応力-ひずみ関係から求める。さらに、温度サイクル試験によって焼結接合層に発生するマクロなひずみ分布を、パワーモジュールの解析モデルを用いたマクロな FEA によって求める。この際、推定したマクロな応力-ひずみ関係を焼結接合層の材料特性として用いる。解析結果より、評価したい任意箇所における焼結接合層のひずみ成分を抽出する。最後に、ミクロな FEA モデルに抽出したひずみ成分を境界条件として与え、解析することで、ミクロなひずみ分布を計算する。この際には、推定したミクロな応力-ひずみ関係を空孔を除く金属部分の材料特性として用いる。

6.2 実験方法

6.2.1 温度サイクル試験

温度サイクル試験に用いた評価用モジュールの外観と構成を図 6.2 に示す。基板は AlN（窒化アルミニウム）の両面に Cu 配線層を接合したものを使用した。Si チップは 13.6mm×13.6mm×0.42mm 厚のものを使用した。Si チップと Cu 配線間を焼結 Cu 及び焼結 Ag によって加圧接合した。厚さは焼結 Ag が約 100 μm, 焼結 Cu が約 50 μm

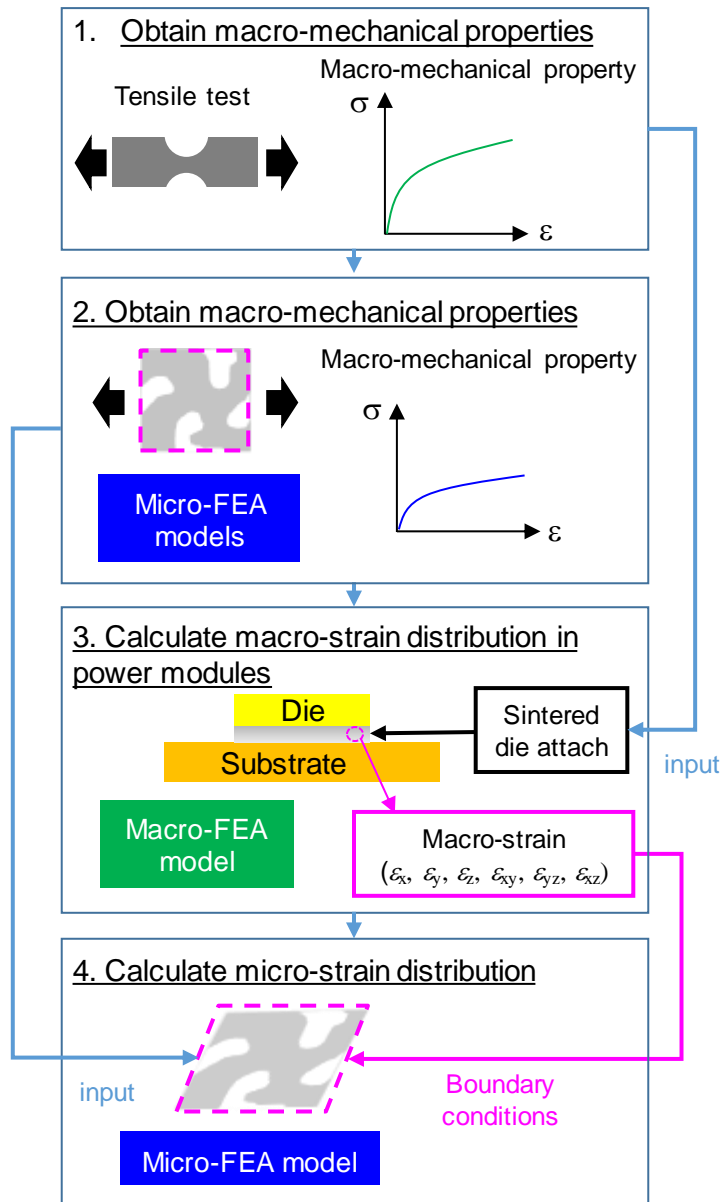


Fig. 6.1 Procedure for evaluation of strain distribution in sintered layer.

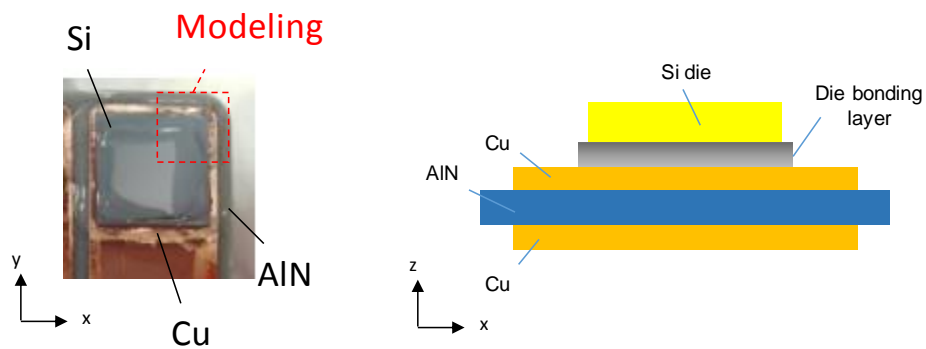


Fig. 6.2 Structure of power module for thermal cycling test.

であった。焼結接合層は、両者の空孔率が同等となるように、焼結 Cu が加圧 4、焼結 Ag が加圧 10A に相当する条件にて接合した。温度サイクル試験は-40℃から 200℃の範囲で実施した。昇温および降温時間は約 3 分、各温度の保持時間は 30 分とした。

6.2.2 温度依存性データの取得

引張試験においては、装置の都合上-40℃から 200℃の範囲で試験が実施できなかった。このため本研究では、上記温度範囲での試験が可能な三点曲げ試験により温度依存性のデータを取得した。温度サイクル試験で想定した焼結 Ag（加圧 10A）と焼結 Cu（加圧 4）を対象とした。局所的な応力集中の影響を考慮するため、三点曲げ試験を再現した FEA の解析結果が、三点曲げ試験により得られた荷重-変位関係を再現するように、試験片の応力-ひずみ関係を求めた。試験片に偏在する相対的に大きなボイドの影響を避けるため、支点間距離は 3 mm とした。治具の押し込み部、支持部の曲率半径は 0.4 mm とした。試験速度は 0.0033 mm/s とし、試験片が破断するまで実施した。試験は各条件 2～7 本実施した。曲げ応力 σ 及び曲げひずみ ε を次式によって計算し、初期の傾きより曲げ弾性率を求めた。

$$\sigma = \frac{3FL}{2wt^2}, \quad \varepsilon = \frac{6dt}{L^2} \quad (6.1)$$

ここで、 F は荷重、 d は変位、 L は支点間距離、 w は幅、 t は厚さである。表 6.1 に試験片寸法を示す。

6.3 解析方法

6.3.1 三点曲げ試験の解析方法

三点曲げを模擬した FEA モデルの一例を図 6.3 に示す。解析モデルは、表 6.1 に示す寸法に従って作成した。解析は対称性を考慮し 1/4 モデルにて実施した。要素は六面体二次要素を使用した。治具と試験片の間に接触を定義し、摩擦係数は 0 に設定した。焼結金属の応力-ひずみ関係は弾塑性（線形等方硬化）で表した。弾性率には三点曲げ試験で得られた曲げ弾性率を用いた。実施した三点曲げ試験では、板厚以上に変形したため、幾何学的非線形を考慮した。ソルバーには、汎用 FEA ソフト ADINA9.0.1[1]を用いた。実験より得られた曲げ弾性率と、解析により得られた降伏応力の温度依存性を係数として、図 6.4 に示すように常温時における応力-ひずみ関係に乗算することで、温度依存性を有する応力-ひずみ関係を作成した。

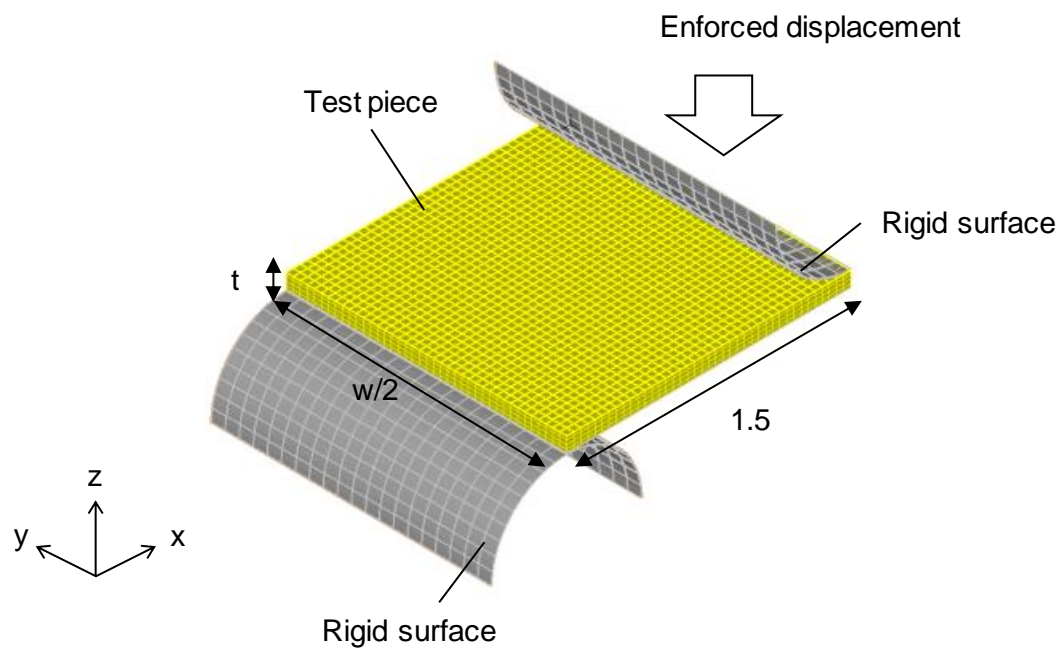


Fig. 6.3 FEA model for three-point bending tests.

Table 6.1 Dimensions of sintered Cu and Ag specimens for three-point bending tests.

	Temp. (°C)	-40		25		150		250	
	Numbers	t	w	t	w	t	w	t	w
Sintered Cu (Pressurized 4)	1	0.251	1.85	0.248	1.76	0.245	1.93	0.220	1.82
	2	0.242	1.80	0.235	1.73	0.240	1.89	0.233	1.80
	3	0.234	1.85	0.227	1.78	0.239	1.97	0.208	1.82
	4	0.213	1.82	0.220	1.80	0.228	1.88	0.213	1.88
	5	-	-	0.115	1.92	-	-	-	-
	6	-	-	0.132	1.92	-	-	-	-
	7	-	-	0.164	1.99	-	-	-	-
Sintered Ag (Pressurized 10A)	1	0.082	3.24	0.083	2.54	0.075	3.44	0.070	3.52
	2	0.073	2.95	0.072	2.34	0.081	2.77	0.073	2.82
	3	-	-	0.077	2.45	0.069	3.13	0.082	3.08
	4	-	-	0.071	2.47	0.077	2.99	-	-

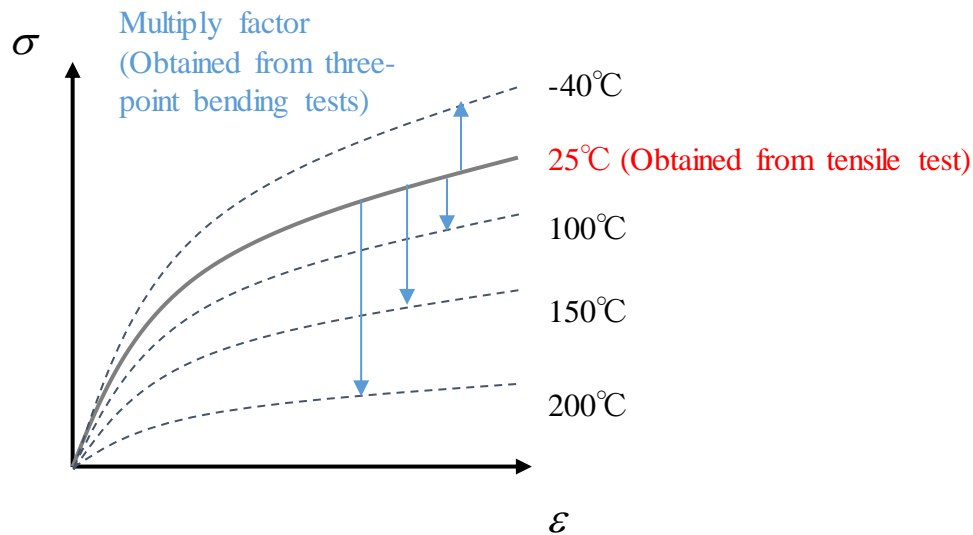


Fig. 6.4 Preparation of temperature dependent stress-strain curves.

6.3.2 マクロなひずみ分布の解析方法

パワーモジュールの焼結接合層に生じるマクロなひずみを FEA によって計算した。パワーモジュールの FEA モデルを図 6.5 に示す。解析規模縮小のため、図 6.2 中の点線で囲んだ 1/4 の領域を解析対象とし、モデル化した。チップ接合材の厚さは、焼結 Ag が 100 μm 、焼結 Cu が 50 μm とした。対称面に対称境界条件を付与し、剛体移動を防ぐため中心位置を z 方向に固定した。要素は六面体二次要素を用いた。ソルバーには、汎用 FEA ソフト ABAQUS/Standard Ver. 2017[2]を用いた。初期温度を 200°C とし、-40°C までの温度変化を解析モデル全体に均一に与えた。応力解析は弾塑性解析とした。解析で用いた常温における弾性の材料定数を表 6.2 に示す。Si, Cu, AlN の材料定数と焼結 Ag, 焼結 Cu の熱膨張係数は温度変化に対して一定とした。焼結 Ag, 焼結 Cu の熱膨張係数は、一般的なバルク Ag, バルク Cu の値を用いた[2]。多孔質体がオープンセルの場合、空孔部の熱膨張係数はゼロであり、全体の熱膨張に影響を及ぼさないため、マクロな熱膨張係数は焼結体を構成する金属部と同じとなる。一方でクローズドセルの場合は、空孔の内圧が影響を及ぼす可能性はあるが、通常はほぼ無視できるレベルであると報告されている[3]。今回対象とする焼結 Ag (加圧 10A) および焼結 Cu (加圧 4) は、ほぼオープンセル構造であり、空孔内圧の影響は無視できると考えた。

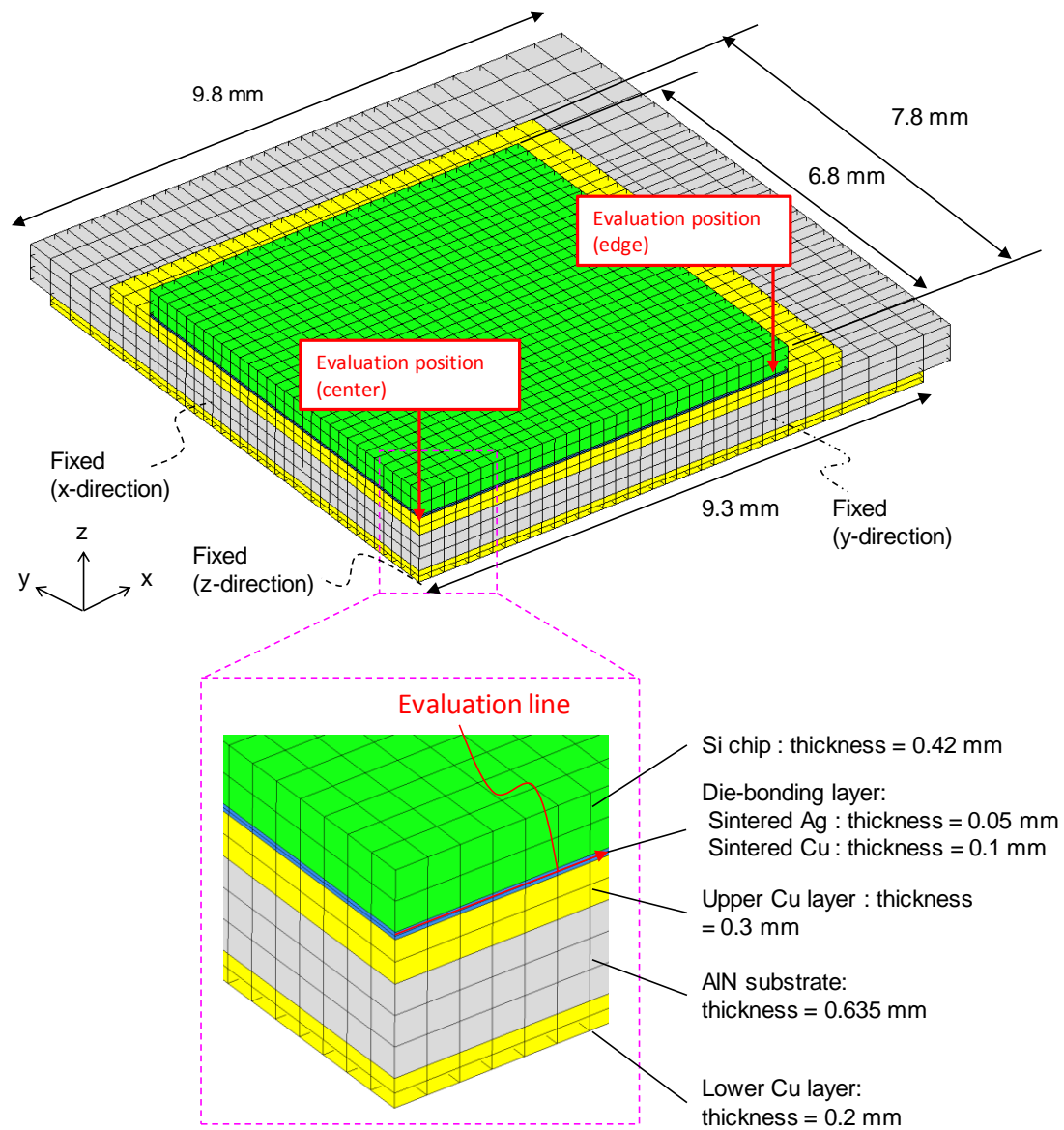


Fig. 6.5 FEA model of power module.

Table 6.2 Material properties.

Materials	Material properties		
	Young's modulus (GPa)	Poisson's ratio	Coefficient of thermal expansion ($10^{-6}/K$)
Si	170	0.07	3.2
Cu	120	0.34	17.0
AlN	320	0.27	4.5
Sintered Cu (RT)	43	0.28	17.0
Sintered Ag (RT)	27	0.31	20.0

焼結接合層の応力-ひずみ関係は、多直線近似の弾塑性等方硬化則により表した。塑性変形挙動は、焼結 Ag は第 2 章で求めた加圧 10A のマクロな応力-ひずみ関係を用いた。焼結 Cu の加圧 4 はマクロな応力-ひずみ関係のばらつきが大きかったため、加圧 13 で求めたミクロな応力-ひずみ関係を加圧 4 のミクロな多孔質モデルに入力し数値材料試験を行うことで求めた。温度依存性は、前節で示した方法により考慮した。焼結接合層の塑性変形時の体積変化は、ABAQUS/Standard に実装されている可壊発泡塑性モデル (CRUSHABLE FOAM) を用いて考慮した[2]。弾性および塑性のポアソン比 (ν , ν_p) は、第 2 章および第 3 章に記載した方法によりミクロな解析モデルを用いて求め、降伏応力比 k は次式の関係から求めた[2]。

$$k = \sqrt{3(1 - 2\nu_p)} \quad (6.2)$$

なお、より詳細な予測のためにはクリープの考慮などが必要となるが、本研究では実用性の観点から未考慮とした。

6.3.3 ミクロなひずみ分布の解析方法

焼結 Ag および焼結 Cu 接合層内部のミクロな金属部分におけるひずみ分布の解析に用いた FEA モデルを図 6.6 に示す。この FEA モデルの境界面が平面を維持するようにして、境界面に強制変位を与えることでミクロなひずみ分布の計算を行った。強制変位量は、前節のマクロな解析により求めた焼結接合層のひずみ 6 成分 (ε_x , ε_y , ε_z , ε_{xy} , ε_{yz} , ε_{xz}) と FEA モデルの全体的な (平均的な) ひずみが一致するようにして求めた。境界条件の設定は、ABAQUS/Standard の Micromechanics Plugin[2]により実施した。作成されたインプットファイルを ADVENTURECluster 形式に変換し、ADVENTURECluster[5]により解析を実施した。ミクロな金属部分の応力-ひずみ関係は、多直線近似等方弾塑性体モデルとし、第 2 章で引張試験結果をベースに求めた常温の応力-ひずみ関係に、三点曲げ試験により求めた温度依存性の係数を乗算することで求めた。ミクロな金属部分のポアソン比は、Ag は 0.37 を用い、Cu は 0.34 を用いた[3]。

6.4 結果と考察

6.4.1 三点曲げ試験

三点曲げ試験により得られた曲げ弾性率の温度依存性を図 6.7 に示す。焼結 Ag, 焼

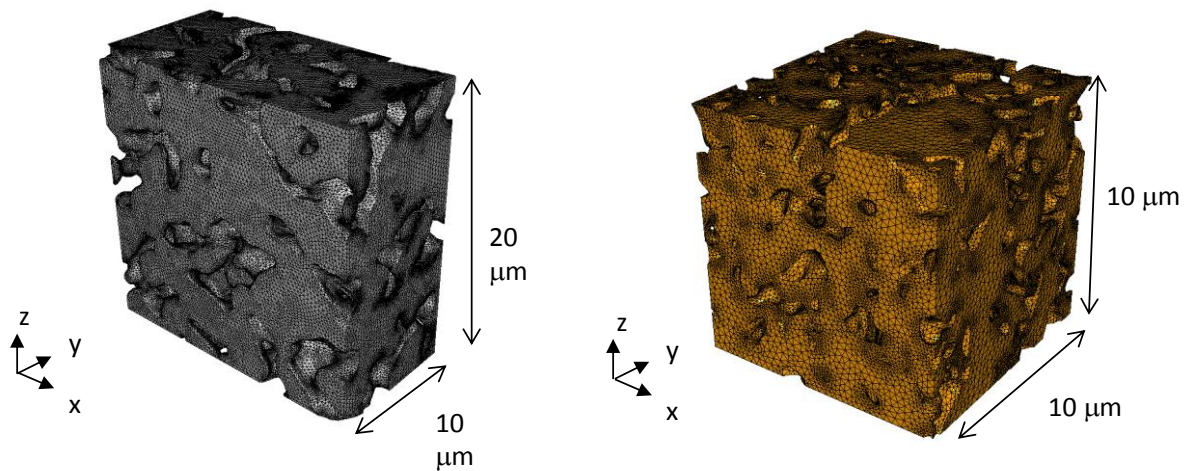


Fig. 6.6 FEA models of microscopic sintered structures: (a) Sintered Ag (Pressurized 10A) and (b) Sintered Cu (Pressurized 4).

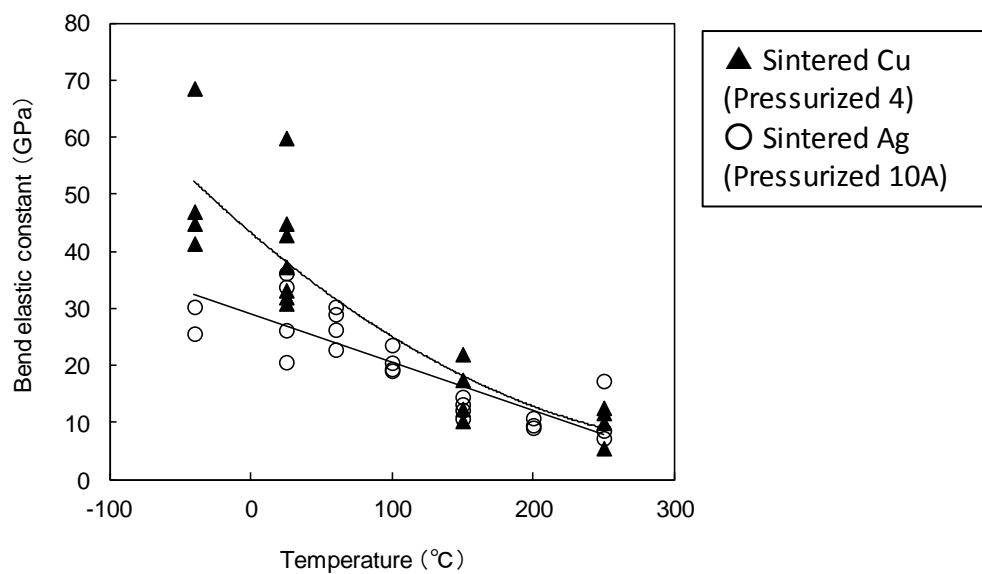


Fig. 6.7 Results of three-point bending tests.

結 Cu とともにばらつきはあるものの、温度の上昇に伴って曲げ弾性率および曲げ強さが低下する傾向にあることがわかった。また、温度上昇による低下を考慮しても、焼結 Ag に比べ、焼結 Cu の方が曲げ弾性率が高くなった。ばらつきに関しては、焼結 Cu の方が焼結 Ag に比べて大きい結果となった。焼結 Cu のばらつきが大きいのは、試験片を作製する際の加圧治具のボルト締めを手作業で実施しているため、圧力を正

確に制御できていないことが原因と考えられる。見積もった曲げ弾性率にばらつきがあるため、図 6.7 の曲げ弾性率測定結果を一次関数及び二次関数で最小二乗近似して用いた。

6.3.1 節に示した方法によって、荷重-変位曲線をフィッティングした結果を図 6.8 に示す。図 6.8 より、解析による推定結果と試験結果が良く一致していることがわかる。この方法を用いて、各温度の降伏応力、加工硬化係数の温度依存性を導出した。各温度で複数あるサンプルの中から、平均に近いと考えられるデータをその温度の代表値として選択し、導出に用いた。

降伏応力と加工硬化係数の各温度依存性を導出した結果を図 6.9 に示す。これより、焼結 Ag に比べて、焼結 Cu の方が降伏応力、加工硬化係数ともに高い傾向にあることが明らかとなった。これらの点は代表値であり、実際には図 6.7 に示す程度のばらつき幅を含んでいるので、温度依存性の係数を求めるデータとしては、図 6.9 中に併記した近似式によって導出した値を用いた。これを第 2 章、第 3 章で求めた常温の応力-ひずみ関係に乗算して、応力-ひずみ関係の温度依存性を求めた結果を図 6.10 に示す。

6.4.2 温度サイクル試験結果

温度サイクル試験結果として、初期状態と 1000 サイクル後の焼結 Ag、焼結 Cu 接合部周辺における断面観察結果を図 6.11 に示す。これより、焼結 Ag においては接合層の厚さ方向にクラックが生じていることがわかる。一方で、焼結 Cu に関しては目立ったダメージは見受けられない。これらの結果より、温度サイクル試験におけるチップ接合材の耐久性は、焼結 Ag に比べて焼結 Cu の方が高いことがわかった。

6.4.3 マクロなひずみ分布の解析結果

焼結接合層におけるマクロな応力分布の解析結果を図 6.12 に、全ひずみ（熱ひずみを除く）分布の解析結果を図 6.13 に示す。図 6.5 に示す厚さ方向中心位置の評価線に沿った分布を示した。これより、中央位置 ($x=0\text{ mm}$) においては、面内方向 (x, y) に二軸引張状態となっていることがわかる。面外方向 (z) の圧縮ひずみは、応力が生じていないことから、面内引張に伴うポアソン収縮によるものであることがわかる。せん断応力およびせん断ひずみはほとんど生じていない。この傾向は $x = 4\text{ mm}$ 付近まで続いており、端部に近づくにつれて xz せん断応力および xz せん断ひずみが増大

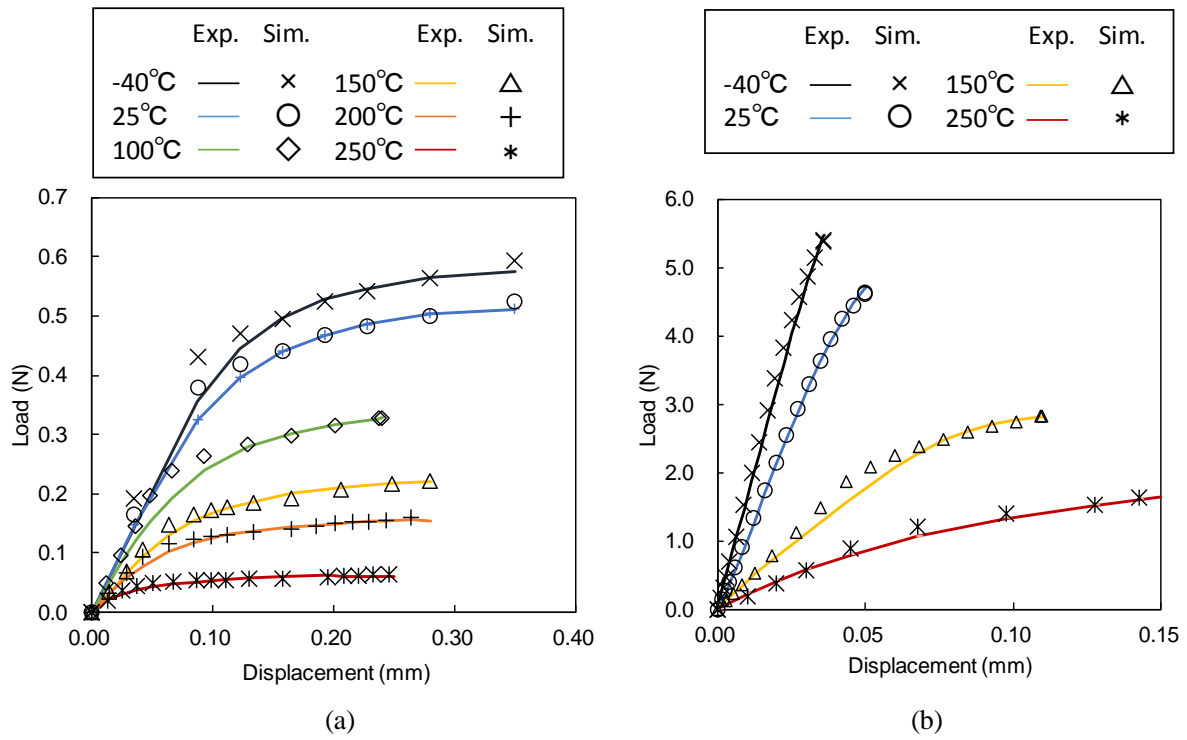


Fig. 6.8 Results of fitting to estimate temperature dependence of macro-mechanical properties: (a) sintered Ag and (b) sintered Cu.

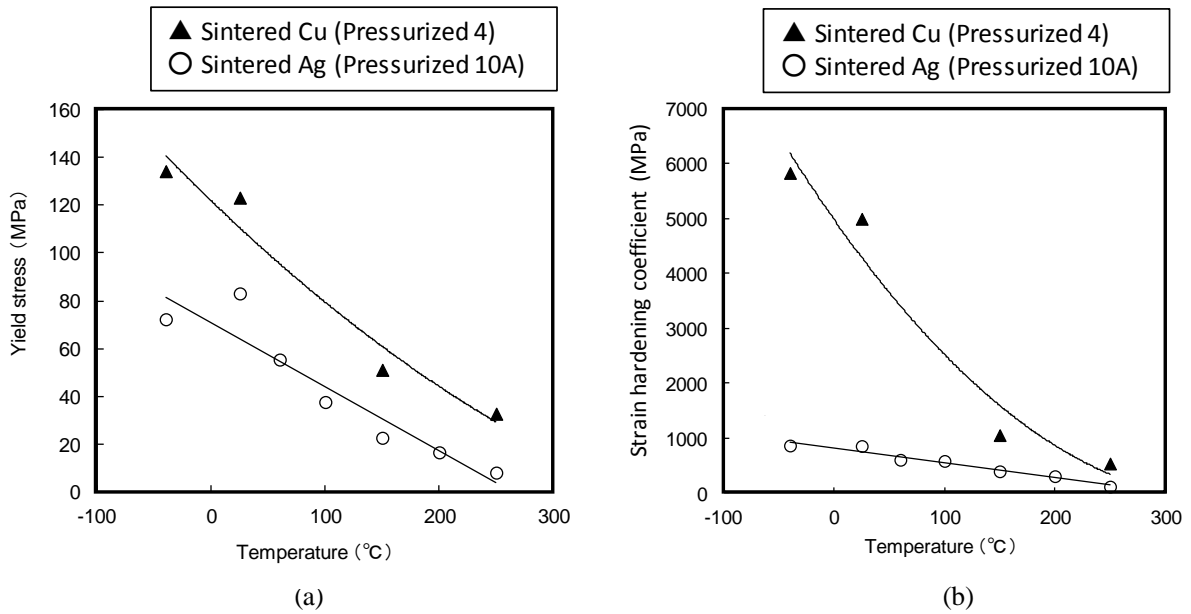


Fig. 6.9 Estimation results of temperature dependence of macro-mechanical properties: (a) yield stress and (b) strain hardening coefficient.

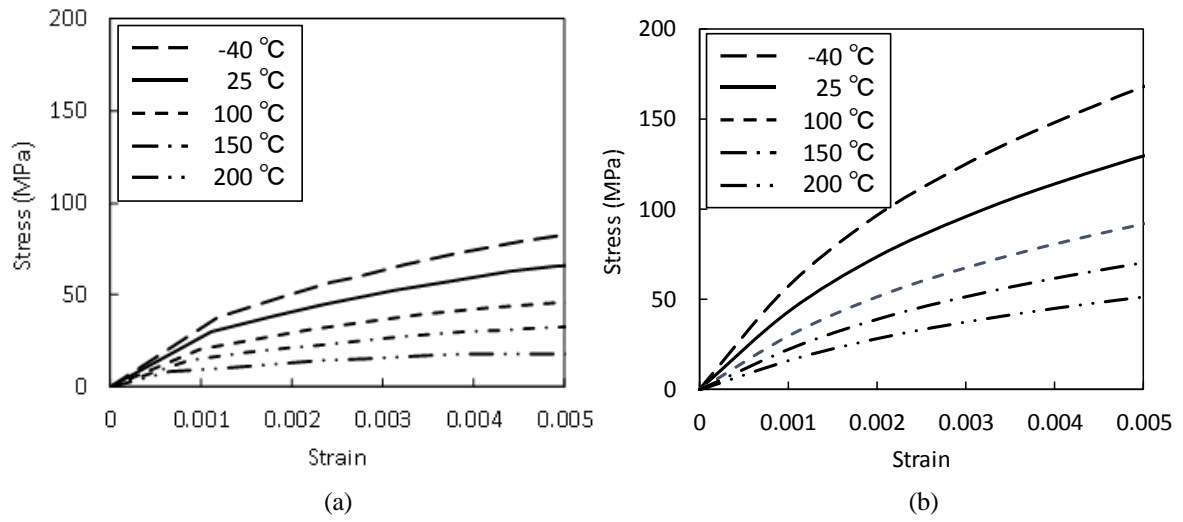


Fig. 6.10 Temperature dependence of stress-strain curves: (a) sintered Ag and (b) sintered Cu.

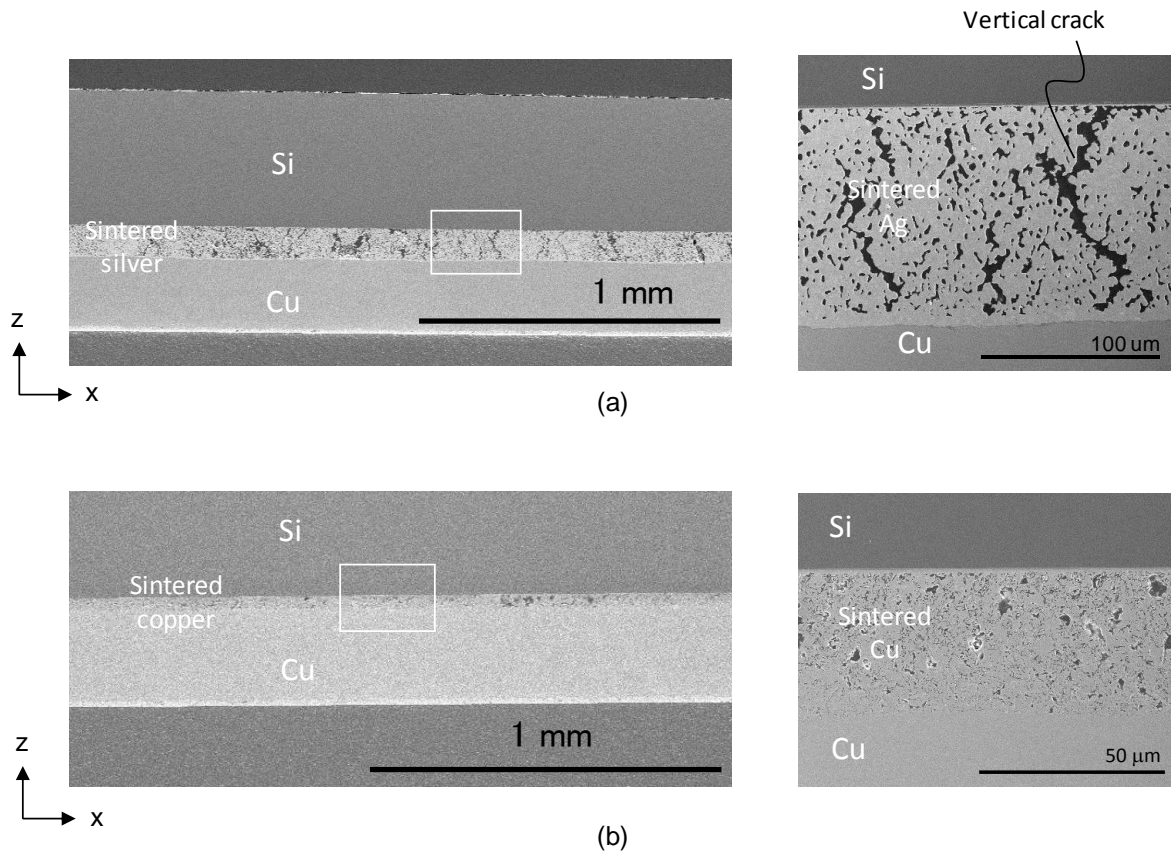


Fig. 6.11 Cross-sectional images of sintered layers after 1000 cycles: (a) sintered Ag and (b) sintered Cu.

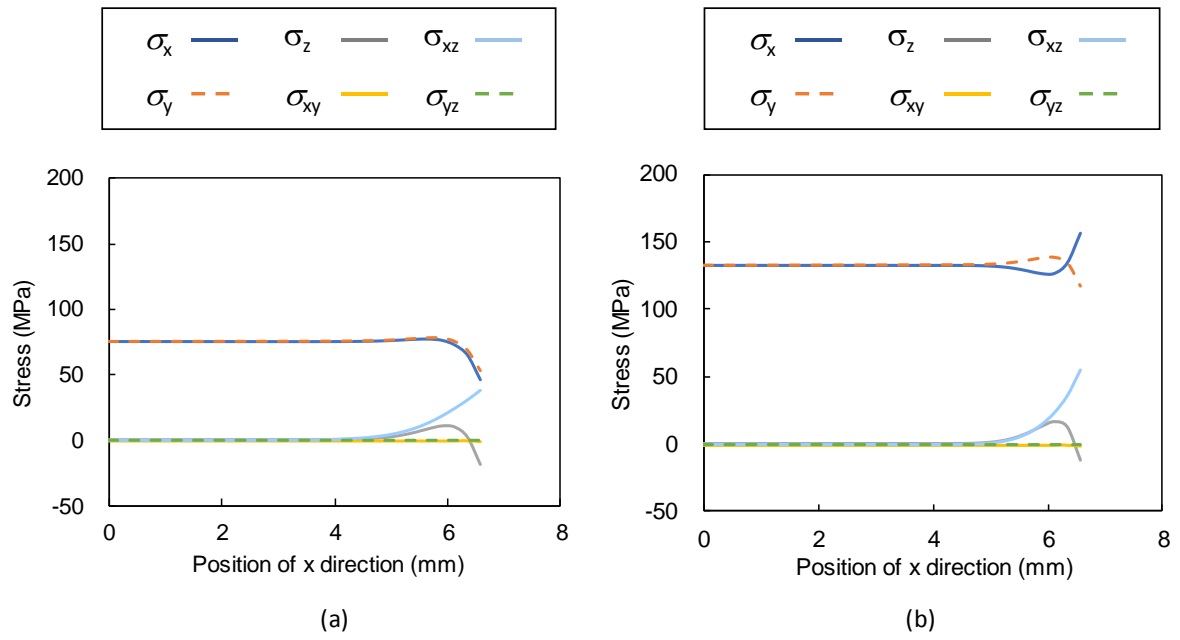


Fig. 6.12 Distributions of stress components along x -direction in sintered layers: (a) sintered Ag and (b) sintered Cu.

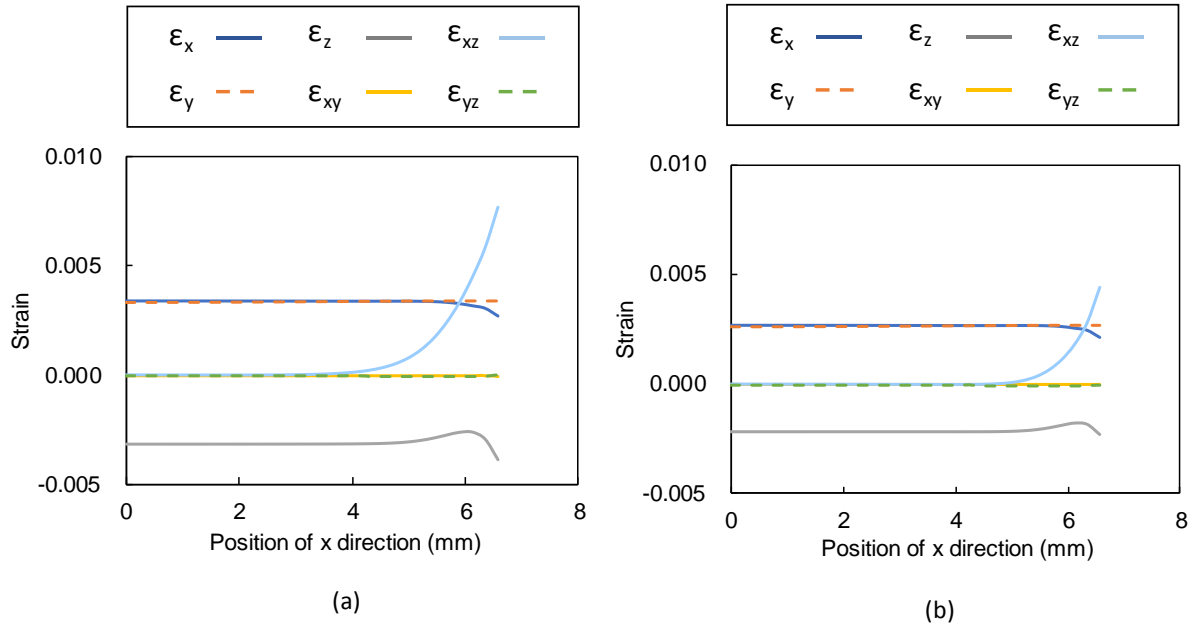


Fig. 6.13 Distributions of strain components along x -direction in sintered layers: (a) sintered Ag and (b) sintered Cu.

する傾向となった。これは、温度変化による熱変形によりパワーモジュールが反り変形を起こしているためである。ひずみの大きさは焼結 Cu に比べて焼結 Ag の方が大きくなった。これは、焼結 Cu のマクロな応力-ひずみ関係（ヤング率，0.2%耐力）が焼結 Ag よりも高いことと，周辺部材との熱膨張係数差が小さいことが原因であると考えられる。本結果は，焼結 Ag が焼結 Cu と比較して早期に破壊した実験結果と整合している。

6.4.4 ミクロなひずみ分布の解析結果

焼結 Ag，焼結 Cu 接合層におけるミクロな金属部分のひずみの分布を計算した。負荷として用いたひずみ成分は，焼結接合層の中央と端部近傍の 2 箇所から取得したものを使用した。まず，中央位置における最大主ひずみ分布の解析結果を図 6.14 に示す。図 6.14 より，ミクロなネック部にひずみが集中していることがわかる。これより，このようなミクロなネック部にひずみが集中することで，ネック部が破壊し，き裂が進展していると考えられる。焼結 Ag と焼結 Cu を比較すると，ひずみの集中箇所数は焼結 Ag の方が多く，ひずみの大きさについても焼結 Ag の方が高い結果となった。これは，温度サイクル試験において焼結 Ag が焼結 Cu と比較して早期に破壊した実験結果と対応している。つづいて，焼結 Ag における破壊の傾向と解析により得られたひずみの分布を比較した（図 6.15）。図 6.15(a)において，ひずみの集中しているネック部が破壊すると想定してクラックのパスを補助線で記載したところ，クラックは折れ曲がりながら接合面と垂直方向に進展すると予想された。これは，図 6.15(b)に示した実験結果の傾向と良く一致している。なお，き裂の進展を詳細に予測するためには，ひずみ分布を基にして逐次的にき裂進展挙動を追いかける必要がある。このようなき裂進展解析に関しては別途検討を進めているところである。

次に，端部近傍位置における解析結果を図 6.16 に示す。端部近傍位置の結果においても，ミクロなネック部にひずみが集中する傾向や，焼結 Ag の方がひずみが大きくなる傾向は，中央位置と同様となった。図 6.17 に，中央位置と同じ方法でクラックのパスを補助線で記載し，焼結 Ag 接合層の端部位置における破壊の傾向と比較した。これより，クラックは斜め方向に進展する予想結果となり，図 6.17(b)に示す端部位置における典型的な破壊モードの傾向と一致することを確認した。

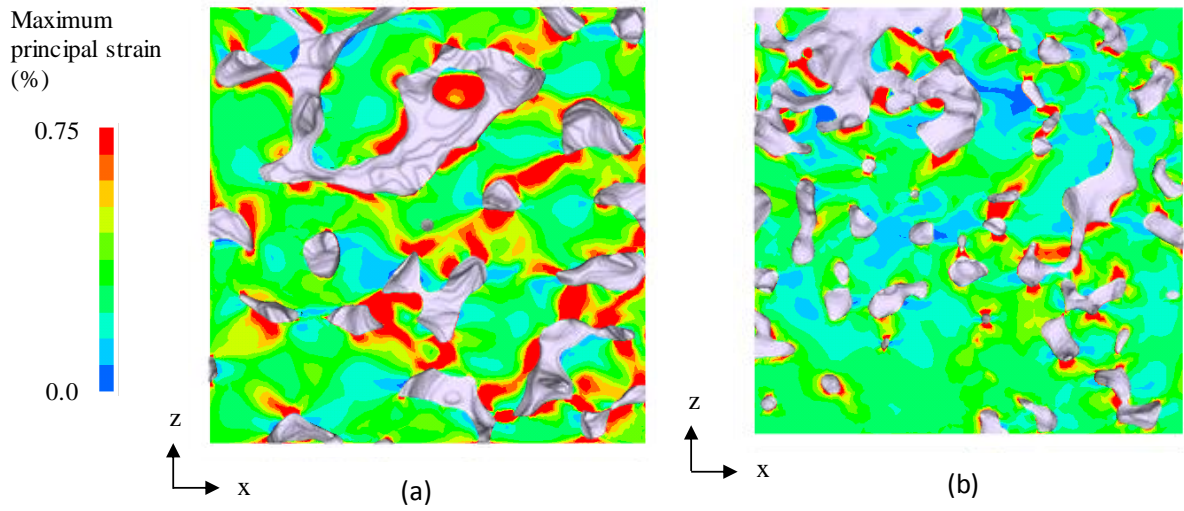


Fig. 6.14 Distributions of maximum principal strain in microscopic structures of sintered layers: (a) sintered Ag and (b) sintered Cu.

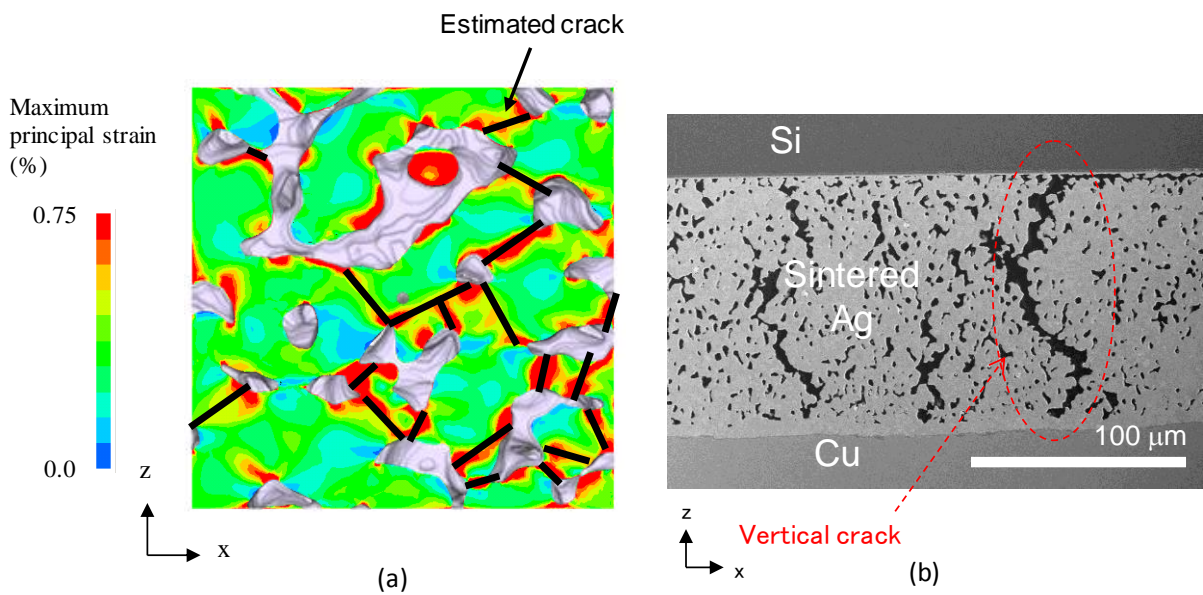


Fig. 6.15 Crack paths of sintered Ag: (a) expected result and (b) experimental result.

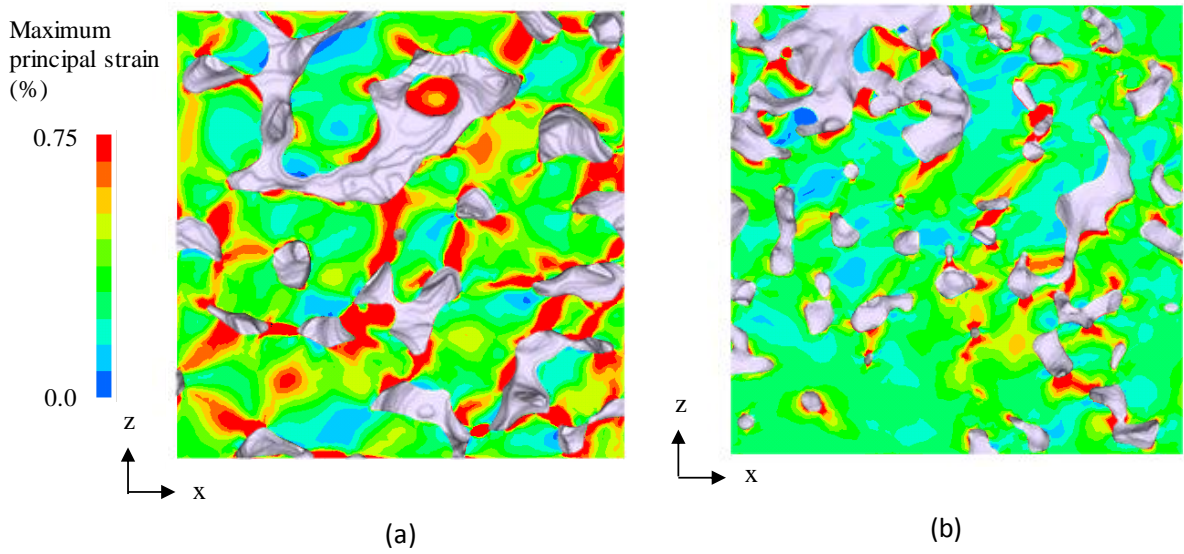


Fig. 6.16 Distributions of microscopic maximum principal strain in microscopic structures of sintered layers: (a) sintered Ag and (b) sintered Cu.

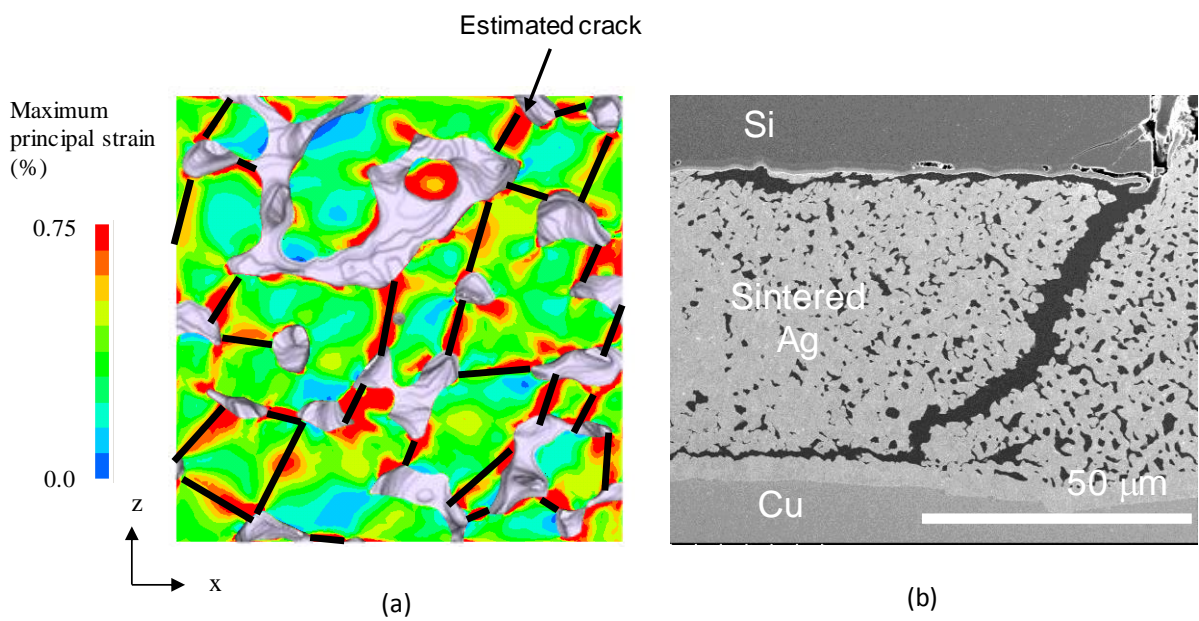


Fig. 6.17 Crack paths of sintered Ag: (a) expected result and (b) experimental result.

6.5 結言

焼結 Ag および焼結 Cu をパワーモジュール接合に用いた際の信頼性を温度サイクル試験により測定するとともに、パワーモジュールのマクロなひずみ分布と焼結接合層内部のミクロなひずみ分布を計算して、材質による寿命の差や破壊メカニズムについて検討した。本章の結果は以下のようにまとめられる。

(1) 温度サイクル試験の結果、焼結 Ag では 1000 サイクル以内で接合層の破壊が進展したのに対し、焼結 Cu では 1000 サイクル後においても破壊がほとんど生じなかった。

(2) パワーモジュールのマクロなひずみ分布を計算した結果、中央付近では面内方向に二軸引張状態であり、端部近傍ではせん断ひずみが増加する傾向となった。また、焼結 Cu 層は焼結 Ag 層と比較してひずみのレベルが小さい結果となり、実験で焼結 Ag が焼結 Cu と比較して早期に破壊した傾向と一致した。

(3) 焼結金属層のミクロな多孔質構造におけるひずみ分布を解析した結果、ひずみはネック部に集中する傾向となった。ひずみのレベルは焼結 Ag に比べて焼結 Cu の方が小さくなった。焼結 Ag に関して、ひずみ集中箇所における破壊を想定してクラックパスを予想したところ、温度サイクル試験における破壊モードを良く再現できることが確認された。

6.6 参考文献

- [1] ADINA R&D, Inc. <http://www.adina.com/index.shtml>.
- [2] Dassault Systemes Corp.: <http://www.3ds.com/>.
- [3] 日本金属学会, 金属データブック.
- [4] 北藺幸一, 佐藤英一, 栗林一彦, “異方性のあるクロースドセル型金属フォームの弾性率, 熱膨張, 熱伝導率に関するマイクロメカニクス解析”, 日本金属学会誌, Vol. 66, No. 2, pp. 53-59, 2002.
- [5] Allied Engineering Corp.: <http://www.alde.co.jp/english/adv/index.html>.

第7章 結論

次世代パワーモジュール向け接合材として期待される低温焼結接合材の機械的特性、疲労特性、パワーモジュールの接合に使用した際の信頼性について、引張試験、ナノインデンテーション、三点曲げ試験などの材料試験と、試験片やパワーモジュールをモデル化したマクロな FEM 解析、試験片内部の多孔質構造をモデル化したミクロな FEM 解析を用いて、マクロ・ミクロな観点から検討した。実用的に重要なマイクロ Ag 粒子を用いた焼結 Ag 接合材と、低コスト・高信頼化が期待されるサブミクロン酸化 Cu 粒子を用いた焼結 Cu 接合材を対象とした。本研究の結果は以下のよう

にまとめられる。

まず第2章では、焼結 Ag 接合材の機械的特性について検討した。この結果、以下の結論を得た。(1) 熱処理条件が同じ場合、推定した焼結 Ag のミクロな応力-ひずみ関係は加圧圧力に大きく依存しなかった。(2) 推定した焼結 Ag のミクロな応力-ひずみ関係は、熱処理によって変化(軟化)した。(3) 推定したミクロな応力-ひずみ関係を用いたナノインデンテーション解析により得られた荷重-変位曲線は、ナノインデンテーション試験により得られた荷重-変位曲線のばらつき範囲内に収まった。(4) 推定した焼結 Ag のミクロな応力-ひずみ関係は、バルク Ag の熱処理有無の引張試験結果の中間に位置し、ヤング率はバルク Ag よりも低かった。これより、ミクロな応力-ひずみ関係としてバルク Ag の値を単純に使用することは難しい。(5) 加圧サンプルの解析モデルをベースに、閾値変更によって空孔率を変化させることで無加圧サンプルの実験結果を再現した。本結果は、任意条件のミクロな応力-ひずみ関係と多孔質構造のモデルがあれば、空孔率依存性を解析により予測できることを示唆している。(6) ポアソン比は、空孔率増加に伴い減少する傾向が見られた。これは、全体の収縮に寄与しないミクロなネック部の占める割合が増加するためと考えられる。

つづく第3章では、焼結 Cu 接合材の機械的特性について検討した。この結果、以下の結論を得た。(1) 引張強度は、4 MPa で加圧した試験片で約 120~180 MPa, 13 MPa で加圧した試験片で約 260~280 MPa であった。(2) ヤング率は、4 MPa 加圧の試験片で約 40~50 GPa, 13 MPa 加圧の試験片で約 70~80 GPa であった。(3) ミ

クロな Cu 部分のヤング率は約 95 GPa であり、バルク Cu のヤング率よりも低く、焼結 Ag の Ag 部分のヤング率より高くなった。(4) 同じ空孔率で比較した場合、焼結 Cu の方が焼結 Ag よりもマクロなヤング率および 0.2% 耐力が高くなった。これは、焼結 Cu は焼結 Ag に比べて高い空孔率でも要求強度を達成することができることを示している。(5) マクロなポアソン比は、空孔率増加に伴い減少した。これは、全体の収縮に寄与しないミクロなネック部の占める割合が増加するためである。

次に第 4 章では、焼結 Ag 接合材の疲労特性について検討した。この結果、以下の結論を得た。(1) 10 MPa で加圧したものと無加圧のもので疲労強度を比較した結果、10 MPa で加圧したもののほうが長寿命となった。(2) 負荷様式と疲労寿命の関係を評価した結果、両振りが約 1000 サイクル、引張片振りが約 4000 サイクル、圧縮片振りが未破壊となり、焼結 Ag は圧縮負荷ではなく主に引張負荷で破壊していることが明らかとなった。(3) 試験片厚さが厚い場合、試験片内部に緻密状態のムラが生じ、薄く作製したものよりも寿命が低下した。(4) 熱処理したものは、熱処理していないものよりも寿命が低下した。(5) 破面観察の結果、ミクロなネック部やボイド周辺部で破壊が生じており、粒界における脆性的な破壊や延性的な破壊が見られた。ネック部の面積が微小であるため、疲労破壊に起因するストライエーションは明確には確認できなかった。(6) ミクロな多孔質構造を模擬した FEA によって、ひずみ分布はネックやボイドの周辺に集中していることを確認した。10 MPa で加圧したものが、無加圧や熱処理したものに比べてひずみ集中の箇所が少なく、ひずみのレベルも低くなった。

つづいて第 5 章では、焼結 Cu 接合材の疲労特性について検討した。この結果、以下の結論を得た。(1) 4 MPa で加圧したものと 13 MPa で加圧したものを比較した場合、13 MPa で加圧したもののほうが長寿命となった。(2) 応力範囲で整理した場合、焼結 Cu の疲労強度は焼結 Ag よりも高くなった。(3) 破面観察の結果、ミクロなネック部やボイド周辺部で破壊が生じており、粒界における脆性的な破壊や延性的な破壊が見られた。ネック部の面積が微小であるため、疲労破壊に起因するストライエーションは明確には確認できなかった。(4) ひずみ範囲で整理した結果、焼結 Cu の疲労強度は焼結 Ag と同等以上と判断された。(5) ミクロなひずみ分布を比較した結果、加圧 13 の方が加圧 4 に比べてひずみ集中の箇所が少なく、その度合も小さ

くなった。

最後に第 6 章では、焼結 Ag および焼結 Cu をパワーモジュール接合に用いた際の信頼性を温度サイクル試験により測定するとともに、パワーモジュールのマクロなひずみ分布と焼結接合層内部のミクロなひずみ分布を計算して、材質による寿命の差や破壊メカニズムについて検討した。この結果、以下の結論を得た。(1) 温度サイクル試験の結果、焼結 Ag では 1000 サイクル以内で接合層の破壊が進展したのに対し、焼結 Cu では 1000 サイクル後においても破壊がほとんど生じなかった。(2) パワーモジュールのマクロなひずみ分布を計算した結果、中央付近では面内方向に二軸引張状態であり、端部近傍ではせん断ひずみが増加する傾向となった。また、焼結 Cu 層は焼結 Ag 層と比較してひずみのレベルが小さい結果となり、実験で焼結 Ag が焼結 Cu と比較して早期に破壊した傾向と一致した。(3) 焼結金属層のミクロな多孔質構造におけるひずみ分布を解析した結果、ひずみはネック部に集中する傾向となった。ひずみのレベルは焼結 Ag に比べて焼結 Cu の方が小さくなった。焼結 Ag に関して、ひずみ集中箇所における破壊を想定してクラックパスを予想したところ、温度サイクル試験における破壊モードを良く再現できることを確認した。

以上より、これまで報告が少なかったマイクロ焼結 Ag や焼結 Cu の基本的な機械的特性や疲労特性がマクロ・ミクロ的な観点から明らかとなった。また、代表的な材質である焼結 Ag と焼結 Cu を比較し、焼結 Cu が焼結 Ag よりも信頼性に優れることとそのメカニズムを、マクロおよびミクロな解析より明らかにすることに成功した。これらの知見は、低温焼結接合材をパワーモジュールに適用するための有用な情報として活用できる。

謝辞

本論文は、著者が筑波大学大学院システム情報工学研究科構造エネルギー工学専攻社会人博士後期課程在学中に、筑波大学大学院システム情報工学研究科 松田哲也准教授のご指導のもとまとめたものです。松田哲也准教授には、本論文の構成や表現方法など、終始、的確かつ丁寧なご指導とご討論をいただきましたこと、厚く御礼申し上げます。また、筑波大学大学院システム情報工学研究科 河井昌道教授、磯部大吾郎教授、松田昭博准教授、国立研究開発法人産業総合研究所 主任研究員 中住昭吾様には有益なご教示とご討論を頂きましたこと深甚なる感謝の意を表します。

本研究は著者が株式会社日立製作所に入社後に行った研究開発内容の一部をまとめたものです。研究を進めるにあたり多くの方のご助言、ご協力をいただきました。株式会社日立製作所 材料研究所 材料イノベーションセンタの守田俊章氏、保田雄亮氏には材料作製や試験など実験的な観点から多くのご助言とご協力をいただきました。心から感謝いたします。株式会社日立製作所 材料イノベーションセンタの寺崎健氏には、シミュレーションの評価方法を中心に、研究全般において多くのご指導、ご助言をいただきましたこと深く感謝いたします。また、株式会社日立化成 蔵渕和彦氏、中子偉夫氏、西村正人氏、石川大氏、川名祐貴氏には、材料開発の観点から多くのご指導とご討論をいただきましたこと、心から御礼申し上げます。また、株式会社日立製作所材料イノベーションセンタ 守谷浩志前ユニットリーダーには本研究の機会を与えていただくとともに、多くのご指導とご討論をいただきましたこと、謹んで御礼申し上げます。

また、上記の方々の他にも株式会社日立製作所の関係者の皆様や、松田哲也研究室の学生の皆様など、多くの方々のご協力をいただきました。ご協力いただいた皆様はこの場を借りて御礼申し上げます。

最後に、本論文を執筆するにあたり、著者を忍耐強く支えてくれた家族に心より感謝します。

本論文に関連する発表論文

1. 査読付き論文

- 1) T. Suzuki, T. Terasaki, Y. Kawana, D. Ishikawa, M. Nishimura, H. Nakako, K. Kurafuchi: “Effect of Manufacturing Process on Micro-Deformation Behavior of Sintered-Silver Die-Attach Material”, IEEE Transactions on Device and Materials Reliability, Vol. 16, Issue 4 ,pp. 588-596, 2016.
- 2) T. Suzuki, Y. Yasuda, T. Terasaki, M. Morita, Y. Kawana, D. Ishikawa, M. Nishimura, H. Nakako, K. Kurafuchi: “Macro- and Micro-Deformation Behavior of Sintered-Copper Die-attach Material”, IEEE Transactions on Device and Materials Reliability, Vol. 18, Issue 1, pp. 54-63 2018.
- 3) T. Suzuki, Y. Yasuda, T. Terasaki, M. Morita, Y. Kawana, D. Ishikawa, M. Nishimura, H. Nakako, K. Kurafuchi: “Effect of Loading Type on Fatigue Lifetime of Sintered-Silver Die Attach”, IEEE Transactions on Device and Materials Reliability, Vol. 18, Issue 3, pp. 350-358, 2018.
- 4) T. Suzuki, Y. Yasuda, T. Terasaki, M. Morita, Y. Kawana, D. Ishikawa, M. Nishimura, H. Nakako, K. Kurafuchi, T. Matsuda: “Tensile-Fatigue Behavior of Sintered Copper Die-Attach Material”, IEEE Transactions on Device and Materials Reliability, Vol. 19, Issue 2, pp. 461-467, 2019.

2. 国際会議論文

- 1) T. Suzuki, Y. Yasuda, T. Terasaki, M. Morita, Y. Kawana, D. Ishikawa, M. Nishimura, H. Nakako, K. Kurafuchi: “Thermal Cycling Lifetime Estimation of Sintered Metal Die Attachment”, 2016 International Conference on Electronics Packaging, 2016.
- 2) T. Suzuki, Y. Yasuda, T. Terasaki, T. Morita, Y. Kawana, D. Ishikawa, M. Nishimura, H. Nakako, K. Kurafuchi, Tetsuya Matsuda: “Evaluation of Microscopic Strain Distribution of Low-Temperature Sintering Die Attach in Thermal Cycling Test”, 2018 20th International Conference on Electronic Materials and Packaging, 2018.

3. 国内会議論文

- 1) 鈴木智久, 保田雄亮, 川名祐貴, 石川大, 西村正人, 中子偉夫, 蔵渕和彦, 守田俊章, 寺崎健: ”三点曲げ試験と有限要素解析による焼結金属接合材の機械的特性の評価”, エレクトロニクス実装学会第 25 回マイクロエレクトロニクスシンポジウム, 2015.